

ORSAY
Série A,
n° d'ordre
722

Paris 1970

THÈSE

PRÉSENTÉE

A LA FACULTÉ DES SCIENCES D'ORSAY

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Gérard COUSSOT

CONTRIBUTION A L'ETUDE DE LA STRUCTURE ELECTRONIQUE
DES ISOLANTS PAR ANNIHILATION DU POSITON

Soutenue le 25 novembre 1970 devant la Commission d'Examen

MM. FRIEDEL

Président

BOK

Mde LAMBERT

Examineurs

M. PAULIN

ORSAY
Série A,
n° d'ordre
722

THÈSE

PRÉSENTÉE

A LA FACULTÉ DES SCIENCES D'ORSAY

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Gérard COUSSOT

CONTRIBUTION A L'ETUDE DE LA STRUCTURE ELECTRONIQUE
DES ISOLANTS PAR ANNIHILATION DU POSITON

Soutenue le 25 novembre 1970 devant la Commission d'Examen

MM. FRIEDEL

Président

BOK

Mde LAMBERT

Examineurs

M. PAULIN

THESE

A LA FACULTE DES SCIENCES D'ORLANS

LE GRAND DE LA FACULTE DES SCIENCES D'ORLANS



Ce travail a été effectué à l'Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires de Saclay.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance à Monsieur DEBIESSE, Directeur du Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay et de l'Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires et à Monsieur BAUER, Adjoint au Directeur de l'I.N.S.T.N. de m'avoir accueilli à l'Institut et de m'avoir donné la possibilité de mener à bien cette étude.

Que Monsieur FRIEDEL, qui m'a fait l'honneur de s'intéresser à cette thèse et de présider le jury, trouve ici l'expression de ma respectueuse gratitude.

J'adresse mes remerciements à Madame le Professeur LAMBERT qui a dirigé cette thèse et m'a prodigué conseils et suggestions.

Je remercie Monsieur le Professeur BOK pour l'intérêt qu'il a porté à ce travail.

Il m'est particulièrement agréable de remercier Monsieur PAULIN pour l'appui que j'ai constamment trouvé auprès de lui et pour les conseils qu'il m'a donnés.

Je tiens également à remercier Messieurs les Professeurs BRANDT et BERKO pour les fructueuses discussions que j'ai eues avec eux.

TABLE DES MATIERES

- INTRODUCTION

- PREMIERE PARTIE : Annihilation du positon

I - Annihilation libre du positon

II - Positonium et autres états liés du positon

II.1 - Positonium (Ps)

II.2 - Formation de Positonium

II.3 - Autres états liés du positon

III - Techniques expérimentales d'observation d'annihilation

III.1 - Détermination de la probabilité à 3 γ

III.2 - Mesure du temps de vie du positon

III.3 - Corrélation angulaire des photons d'annihilation

IV - Annihilation du positon dans les cristaux

IV.1 - Distributions angulaires observées

IV.2 - Processus "Umklapp"

V - Etude projetée

V.1 - Mesure de la mobilité du positon

V.2 - Choix des échantillons

- DEUXIEME PARTIE : Dispositif expérimental

I - Banc de corrélation angulaire

I.1 - Description générale

I.2 - Ensemble porte-source échantillon

I.3 - Dispositif d'alignement des fentes collimatrices

II - Source de positons

III - Résolution angulaire du banc de corrélation . Correction

Dimensions des échantillons

IV - Dispositif électronique de détection en coïncidence

IV.1 - Introduction

IV.2 - Description générale

IV.3 - Mise en forme rapide

IV.4 - Tests et résultats expérimentaux

V - Enregistrement et dépouillement des données expérimentales

VI - Vérifications du dispositif expérimental

- TROISIEME PARTIE : Résultats expérimentaux

I - Mise en évidence d'une composante étroite sur les courbes de corrélation angulaire des cristaux de quartz naturel

II - Existence d'une structure fine dans certains quartz

III - Confirmation expérimentale que ces deux effets caractérisent l'annihilation du positon dans le quartz

III.1 - Traitement de surface

III.2 - Diffraction des rayons gammas

IV - Observation de particularités analogues pour des cristaux de fluorure de magnésium ($F_2 Mg$)

V - Observation de singularités sur les courbes de corrélation angulaire de MgO , $Ca F_2$, $U O_2$

VI - Cas des halogénures alcalins

- QUATRIEME PARTIE : Etude des échantillons de quartz

I.1 - Mesure de densité

I.2 - Diffusion des rayons X aux petits angles

I.3 - Utilisation de la méthode de Lang

I.4 - Analyse des impuretés

II - Conclusions

- CINQUIEME PARTIE : Evolution des singularités sous l'action de divers agents physiques

I - Traitement électrolytique des échantillons

II - Traitement thermique des échantillons de quartz de types différents

III - Influence de la température

III.1 - Sur la composante étroite

III.2 - Sur les modulations

IV - Influence des défauts créés

IV.1 - Par trempe

IV.2 - Par irradiation

V - Influence de la vitesse de croissance du cristal synthétique

- SIXIEME PARTIE : Interprétation des résultats expérimentaux

I - Influence de la structure électronique sur l'annihilation du positon

II - Description de l'état lié à l'origine de la composante étroite comme une fonction de Bloch

II.1 - Interprétation des modulations

II.2 - Influence de la température sur les modulations

III - Confirmation du modèle proposé

III.1 - Modulation suivant une direction quelconque

III.2 - Cas d'un polycristal

IV.- Origine de l'état lié ; Positonium

IV.1 - Temps de vie du positon dans le quartz

IV.2 - Influence de la température sur l'élargissement de la composante étroite

IV.3 - Action d'un champ magnétique sur l'intensité de la composante étroite

IV.4 - Conclusion

- CONCLUSION

- ANNEXE

- PUBLICATIONS relatives aux phénomènes mis en évidence dans ce travail

- BIBLIOGRAPHIE



Digitized by the Internet Archive
in 2026

CONTRIBUTION A L'ETUDE DE LA STRUCTURE ELECTRONIQUE DES ISOLANTS PAR ANNIHILATION DU POSITON

INTRODUCTION

Lorsque les positons sont arrêtés dans la matière, la plupart d'entre eux s'annihilent avec un électron sous forme de deux rayons γ d'énergie $E = mc^2$. La conservation de la quantité de mouvement impose que dans le système du centre de masse de la paire $e^+ e^-$ les deux γ soient émis à 180° . Si la paire qui s'annihile possède une quantité de mouvement dans le système du laboratoire, les deux γ seront émis dans des directions faisant un angle inférieur à 180° . La distribution angulaire des γ d'annihilation reflètera donc la distribution de la quantité de mouvement des paires $e^+ e^-$.

Dans un cristal, la paire qui s'annihile peut être décrite par une fonction de Bloch et la loi de conservation des moments du cristal $e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} = e^{i(\vec{k} + \vec{G}) \cdot \vec{r}}$ peut être appliquée où il est tenu compte des processus Umklapp par $\vec{G}$ qui représente un vecteur quelconque du réseau réciproque.

En principe, donc, on pourrait s'attendre à ce que la périodicité du réseau réciproque affecte la corrélation angulaire des deux γ d'annihilation. En fait, dans les nombreux solides étudiés depuis plus de vingt ans, les distributions angulaires observées n'apparaissent pas affectées de manière significative par ces contributions à $\vec{p} = \vec{k} + \vec{G}$. Exceptionnellement toutefois et seulement dans un petit nombre de métaux peu courants, un effet de limite de zone peut être résolu.

Cette thèse rapporte des mesures de corrélation angulaire dans des isolants qui, pour la première fois, montrent des modulations à la première zone de Brillouin et, dans certains cas, reflètent les dimensions et la périodicité de la maille réciproque.

Ce dernier effet est étudié en particulier d'une manière systématique. Cette étude a été menée avec deux objectifs principaux : tout d'abord définir les conditions optimales d'observation et élucider le type d'annihilation à l'origine de ce nouvel effet.

Nous rappelons dans la première partie un certain nombre de généralités concernant l'annihilation du positon dans les cristaux. Les caractéristiques de l'appareillage spécialement conçu pour cette étude sont décrites au Chapitre II. Les résultats expérimentaux mettant en évidence les deux nouveaux phénomènes observés sont présentés au Chapitre III. Les Chapitres IV et V sont consacrés à l'étude des caractéristiques des échantillons de quartz et à l'influence des divers facteurs physiques destinés à définir les conditions optimales d'observations. L'interprétation des résultats et la confirmation du modèle proposé sont présentées dans le Chapitre VI où l'origine du processus d'annihilation est discutée.

PREMIERE PARTIE : Annihilation du positon

I - Annihilation libre du positon

II - Positonium et autres états liés du positon

II.1 - Positonium (Ps)

II.2 - Formation de Positonium

II.3 - Autres états liés du positon

III - Techniques expérimentales d'observation d'annihilation

III.1 - Détermination de la probabilité à 3 γ

III.2 - Mesure du temps de vie du positon

III.3 - Corrélation angulaire des photons d'annihilation

IV - Annihilation du positon dans les cristaux

IV.1 - Distributions angulaires observées

IV.2 - Processus "Umklapp"

V - Etude projetée

V.1 - Mesure de la mobilité du positon

V.2 - Choix des échantillons

CHAPITRE I

ANNIHILATION DU POSITON

Prévu par la théorie de DIRAC / 1 / et détecté expérimentalement par ANDERSON en 1932 / 2 /, le positon possède les mêmes caractéristiques que celles de son anti-particule, l'électron, excepté les signes contraires de sa charge et de son moment magnétique.

Instable dans la matière, le positon s'annihile avec un électron. L'énergie ainsi libérée ($E_{e.m}$) apparaît sous la forme de rayonnements électromagnétiques :

$$E_{e.m} = 2 m_0 c^2 + E_+ + E_-$$

où m_0 est la masse au repos de l'électron, E_+ et E_- les énergies cinétiques associées respectivement au positon et à l'électron.

En l'absence d'interaction de la paire électron-positon qui s'annihile avec une particule étrangère (électron, noyau ...) la conservation de la quantité de mouvement impose l'émission d'au moins deux photons. Les phénomènes d'annihilation conduisant à l'émission d'un seul photon ou sans émission de photons dans lesquels une partie ou toute l'énergie est cédée à une ou plusieurs particules étrangères sont théoriquement possibles, mais leur probabilité est très petite et ces phénomènes sont en général négligeables.

La conservation de la parité dans les interactions électro-magnétiques impose des restrictions sur le nombre de photons émis. Ce nombre de photons créés dépend directement de l'orientation relative des spins de l'électron et du positon qui s'annihilent. Lorsque les spins sont antiparallèles (état singulet $1 S_0$) seule l'émission d'un nombre pair de photons est autorisée. Quand les spins sont parallèles (état triplet $3 S_1$) seul un nombre impair de photons peut être émis.

Le positon peut s'annihiler librement ou former un état lié avant de s'annihiler.

I - Annihilation libre du positon

Pour des électrons non polarisés de vitesses non relativistes qui s'annihilent librement, la section efficace d'annihilation à 2γ calculée par DIRAC / 1 / est

$$\sigma_{2\gamma} = \pi r_o^2 \frac{c}{v} \quad (1)$$

où r_o est le rayon classique de l'électron, v la vitesse relative positon-électron, c la vitesse de la lumière.

Le rapport des sections efficaces à 3γ et 2γ moyennées sur tous les états de spins est

$$\frac{\sigma_{3\gamma}}{\sigma_{2\gamma}} = \frac{1}{372}$$

Le taux d'annihilation λ dépend de la densité électronique n du milieu à la position du positon, mais est indépendant de la vitesse relative des deux particules :

$$\lambda = \sigma v n = \pi r_o^2 c n$$

La vie moyenne du positon dans le milieu est égale à l'inverse du taux d'annihilation

$$\tau_{2\gamma} = \frac{1}{\lambda_{2\gamma}} \quad (2)$$

Dans un milieu de densité électronique élevée, le temps de thermalisation du positon est très court, de l'ordre de $3 \cdot 10^{-12}$ sec dans les métaux / 3 /. Or la vie moyenne du positon est voisine de 10^{-10} sec et la plupart des positons sont thermalisés au moment de leur annihilation. Cette thermalisation du positon n'est toutefois pas confirmée à très basse température / 4 /.

Outre la vie moyenne du positon thermalisé, le processus d'annihilation libre peut être caractérisé par les distributions angulaires ou énergétiques des 2γ d'annihilation. Si l'électron et le positon s'annihilent au repos, les deux quanta sont émis à 180° et possèdent une énergie de $m_0 c^2$.

Si le positon thermalisé s'annihile bien au repos, l'électron possède, en général, une quantité de mouvement p_{e-} non négligeable qui influera directement dans le système du laboratoire sur les caractéristiques des 2γ d'annihilation.

Ceux-ci auront une énergie $m_0 c^2 \pm \Delta E$ et seront émis à un angle $\pi \pm \theta$.

ΔE et θ sont reliées aux composantes de la quantité de mouvement $p_{//}$ dans le plan d'émission des 2γ d'annihilation et $p_{\perp}$ sur l'axe perpendiculaire à ce plan par les relations :

$$\Delta E = \frac{1}{2} p_{//} c \quad (3)$$

$$\theta \simeq \frac{p_{\perp}}{mc} \quad (4)$$

Les caractéristiques des gammas d'annihilation fournissent donc une information sur la quantité de mouvement des électrons qui participent à l'annihilation.

L'annihilation libre à 3 γ est plus complexe. Il existe plusieurs possibilités pour satisfaire les lois de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement et les γ créés présentent un spectre continu en énergie. Le taux d'annihilation d'un tel processus est très inférieur à celui du processus à 2 γ .

$$\frac{\lambda_{3\gamma}}{\lambda_{2\gamma}} = \frac{1}{3 \times 372} = \frac{1}{1116}$$

mais sa faible probabilité ($< 0,3\%$) le rend, en pratique, négligeable.

Ce processus d'annihilation libre du positon, toujours observé quel que soit le milieu étudié, est très général. Dans certaines conditions, que nous allons examiner, il peut cependant exister d'autres processus compétitifs dans lesquels le positon forme un état lié avant de s'annihiler.

II - Positonium et autres états liés du positon

II.1 - Positonium (Ps)

L'existence d'un état lié positon-électron ou Positonium (Ps), prévue par MOHOVOVISIC / 5 / en 1934, fut mise en évidence par DEUTSCH / 6 / dans les gaz, en 1945. Sa structure est analogue à celle d'un atome d'hydrogène et son comportement est exactement décrit par la théorie quantique d'un atome d'hydrogène, dont la masse réduite est égale à $\frac{m}{2}$.

L'énergie de liaison est :

$$W_{Ps} = \frac{e^4 M Z^2}{2 \hbar^2 n^2} \quad (\text{Si } n = 1, W = 6,8 \text{ eV}) \quad (5)$$

et le rayon de l'atome de Ps est :

$$r_{Ps} = \frac{\hbar^2 n^2}{e^2 M Z^2} \quad (\text{Si } n = 1, r_{Ps} = 1,06 \text{ \AA}) \quad (6)$$

Le positonium peut se présenter sous deux états :

- l'état triplet ou ortho-positonium, où les spins de l'électron et du positon sont parallèles,
- l'état singulet ou para-positonium, où les spins sont anti-parallèles.

L'état triplet est trois fois plus abondant que l'état singulet.

Le sens relatif des spins définit le nombre de photons d'annihilation ; l'ortho-positonium est détruit sous forme de 3 γ , le para-positonium sous forme de 2 γ émis rigoureusement à 180° dans le système du centre de masse.

Ces deux états se caractérisent également par leur vie moyenne avant annihilation dans le vide. La vie moyenne du para-positonium libre est $\tau_{pPs} = 1,25 \times 10^{-10}$ sec tandis que celle de l'ortho-positonium libre est de $\tau_{oPs} = 1,4 \cdot 10^{-7}$ sec.

Les caractéristiques du positonium dans le vide se trouvent modifiées par l'interaction du positonium avec la matière. Dans un solide où la densité électronique est élevée, la vie moyenne de l'état triplet peut être fortement abrégée par l'annihilation prématurée du positon avec un électron du solide autre que celui auquel il est lié (effet de pick-off) / 7 /.

D'autre part, les processus provoquant une conversion entre les états triplets et les états singulets modifient les intensités relatives. De telles conversions peuvent résulter de l'échange de l'électron du Ps avec l'électron célibataire d'une molécule paramagnétique (effet de quenching) au cours d'une collision.

Enfin, l'action d'un champ magnétique, en provoquant le mélange des états $m = 0$ (effet Zeemann) peut aussi modifier l'abondance relative des processus d'annihilation à 2 γ et 3 γ .

11.2 - Formation de Positonium

En 1949, ORE définit théoriquement les conditions énergétiques de formation du Positonium dans les gaz / 8 /.

Soit I l'énergie d'ionisation d'une molécule de gaz. La formation de positonium nécessite une énergie $(I - 6,8)$ eV et seul le positon ayant une énergie $E_e + > I - 6,8$ eV peut former du positonium. Cependant, si $E_e + > I$, la formation de Ps est négligeable vis-à-vis des phénomènes d'ionisation. Même si le Ps est formé, il est détruit rapidement par collisions.

La condition $I - 6,8 < E_e + < I$ est nécessaire mais non suffisante.

Le transfert d'énergie des électrons à des niveaux d'excitation peut en effet constituer un processus de ralentissement du positron énergétiquement plus favorable que la formation de Ps.

Soit E l'énergie d'excitation du premier niveau électronique.

Si $E < I - 6,8$ eV, la probabilité de formation du positonium est très peu probable (figure 1 a).

Si $E > I - 6,8$ eV, il existe une bande d'énergie $V - 6,8 < E_e + < E$ appelée intervalle de Ore, où la formation de Ps est le mécanisme de ralentissement le plus probable (figure 1 b). Cette théorie, applicable dans les gaz, a été modifiée pour les solides par FERRELL / 9 / en 1956. Le potentiel d'ionisation est remplacé par le niveau le plus bas de la bande de conduction. La condition de Ore s'écrit alors :

$$\frac{1}{2} R_Y + X_{Ps} - X_{e-} - X_{e+} > 0 \quad (7)$$

où R_Y est l'énergie de liaison du Ps, X_{Ps} , X_{e^+} , X_{e^-} sont les affinités relatives du cristal pour le positonium, le positon et l'électron. Pour que le Ps soit d'autre part formé en quantité appréciable, il faut que le temps de transit du positon dans l'intervalle de Ore t_{Ore} , soit grand par rapport au temps de formation du Ps, ce qui impose la condition supplémentaire $\Gamma_{Ps} \cdot t_{Ore} \gg 1$ où Γ_{Ps} représente le taux de formation de Ps.

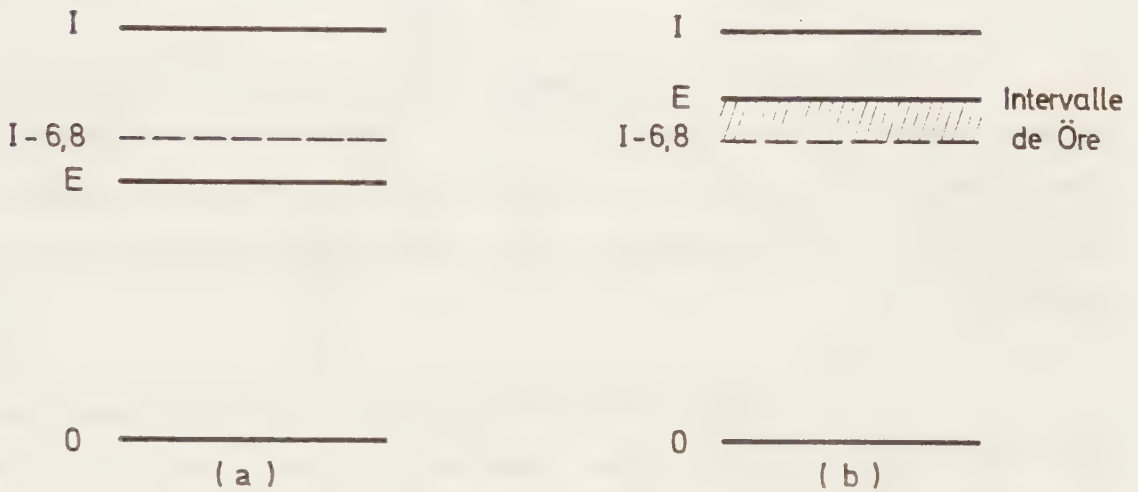


Fig. 1 - Diagramme de Öre

Dans les cristaux moléculaires où il n'existe pas de niveau excité très éloigné du potentiel d'ionisation, la formation de Ps est énergétiquement possible. La quantité de Ps formé dépend alors de la largeur de l'intervalle de Öre / 10 /.

Dans les cristaux ioniques ainsi que dans les métaux, la condition de Ore n'est pas satisfaite.

11.3 - Autres états liés du positon

Le positon peut, théoriquement, former, avant de s'annihiler, des états liés avec des ions négatifs ou des atomes / 11 , 12 /.

L'énergie de liaison du positon dans ces composés (de WHEELER) de l'ordre de 0,5 à 1 eV est nettement plus petite que celle du positonium et leur existence n'a jamais été établie expérimentalement dans les solides.

Un autre type d'état lié que peut former le positon est son piégeage par un défaut cristallin lacune ou dislocation. Ce type d'état lié a été récemment mis en évidence dans les métaux / 13 / et dans certains isolants tels que les halogénures alcalins / 14 / où la longue vie de certains positons est due à leur piégeage dans des vacances d'ions positifs.

Il est à remarquer que le positon piégé qui s'annihile librement avec un électron du solide n'est pas thermalisé comme dans le processus d'annihilation libre. Et la quantité de mouvement que possède le positon piégé dans le puits de potentiel du défaut influera de manière non négligeable sur les caractéristiques énergétiques ou de corrélation angulaire des γ d'annihilation.

Des états liés de nature plus complexe du positon dans les défauts ont aussi été proposés par BRANDT / 15 / tels que le piégeage de paires électron-positon dans des vacances positives ou négatives.

Parmi les types d'états ainsi proposés, seul le piégeage du positon par des vacances d'ions positifs a pu, jusqu'à présent, être mis en évidence dans les halogénures alcalins / 16 /.

Les différents processus d'annihilation sont schématisés sur la figure 2.

Source de positons

Ralentissement par collisions et ionisations

[Vacances | Particules piégées | Interstitiels]

Positons thermalisés

Annihilation libre

$$\frac{2\gamma}{3\gamma} = \frac{372}{3\gamma}$$

$$\tau_l \simeq 2 \cdot 10^{-10} \text{ s}$$

composante large

Formation d'un état lié

Intervalle de ORE

Centre d'annihilation



Composé de Wheeler
A [| e⁺ | -]

$\tau > \tau_l$
Composante large

Composante large

$$2\gamma$$

$$\tau_{p-Ps} = 1,25 \cdot 10^{-10} \text{ s}$$

Composante étroite

Positonium
 $\frac{1}{4} p - Ps$
 $\frac{3}{4} o - Ps$

Quenching
ou Pick-off

$$\tau_{p-Ps} < \tau < \tau_{o-Ps}$$

$$3\gamma$$

$$\tau_{o-Ps} = 1,4 \cdot 10^{-7} \text{ s}$$

Composante large

Fig. 2 - Principaux processus d'annihilation du positon

III - Méthodes expérimentales d'observation d'annihilation du positron

III.1 - Détermination de la probabilité d'annihilation à 3 gammas

Trois détecteurs sont disposés autour de l'ensemble source-échantillon (figure 3). Les photons détectés sur chaque voie ont une énergie telle que la somme des énergies soit égale à $2mc^2$.

Ce dispositif qui permet de détecter sans ambiguïté l'annihilation d' ^0Ps nécessite des temps de comptage très longs et est d'un emploi peu courant.

L'étude de la distribution en énergie des photons d'annihilation reflétée par le spectre d'amplitude résultant de leur détection dans un scintillateur ou une diode Ge (Li) constitue une autre méthode, moins directe mais très rapide permettant de déterminer la probabilité d'annihilation à 3 γ

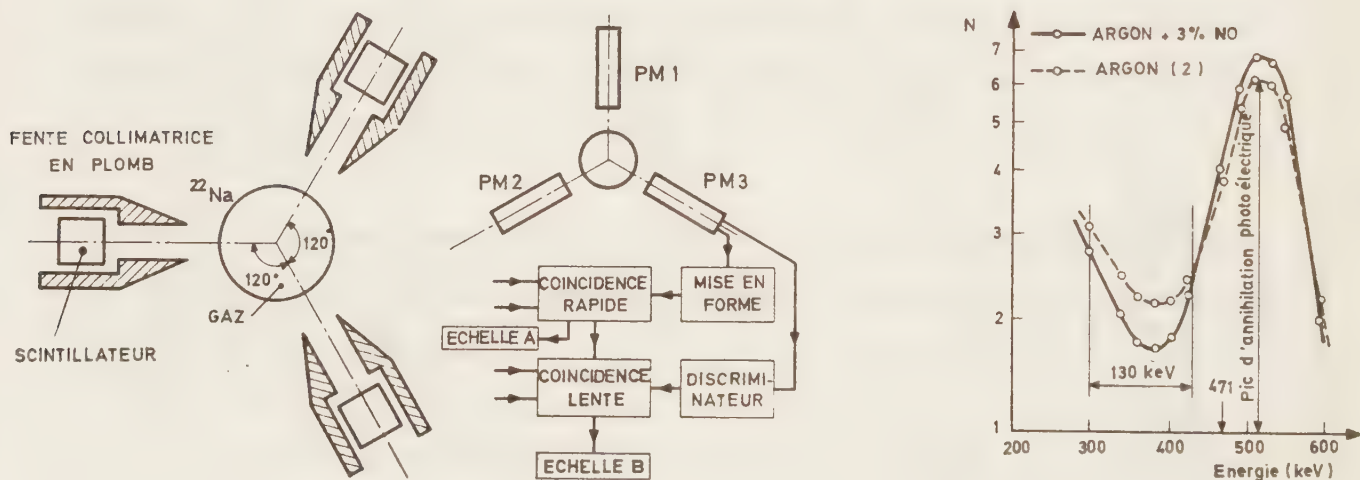


Fig. 3 - La partie gauche représente un ensemble expérimental de détermination du taux d'annihilation à 3 γ . Les spectres de droite représentent les variations des intensités pic-vallée en fonction de la concentration de NO dans de l'argon (effet de Quenching)

On compare les intensités relatives du pic photoélectrique et de la "vallée" comprise entre le front Compton et le pic photoélectrique (figure 3), obtenues pour deux milieux d'annihilation différente.

III.2 - Mesure du temps de vie du positon

La source de positons utilisée est du ^{22}Na dont le schéma de désintégration montre que le positon est émis en même temps qu'un gamma d'origine nucléaire de 1,28 MeV (figure 4). L'étude des coïncidences retardées entre ce gamma de 1,28 MeV et les gammas d'annihilation de 0,511 MeV fournit le spectre de temps de vie du positon avant annihilation. L'information en temps est transformée en amplitude et le spectre d'amplitude obtenu est dépouillé par la méthode de la pente semi-logarithmique. L'analyse des diverses composantes dans ce spectre permet de caractériser des processus d'annihilation de différentes proportions et leurs intensités relatives. Ainsi, l'annihilation de l'ortho-positonium, par exemple, se manifeste en général par l'existence d'une composante lente.

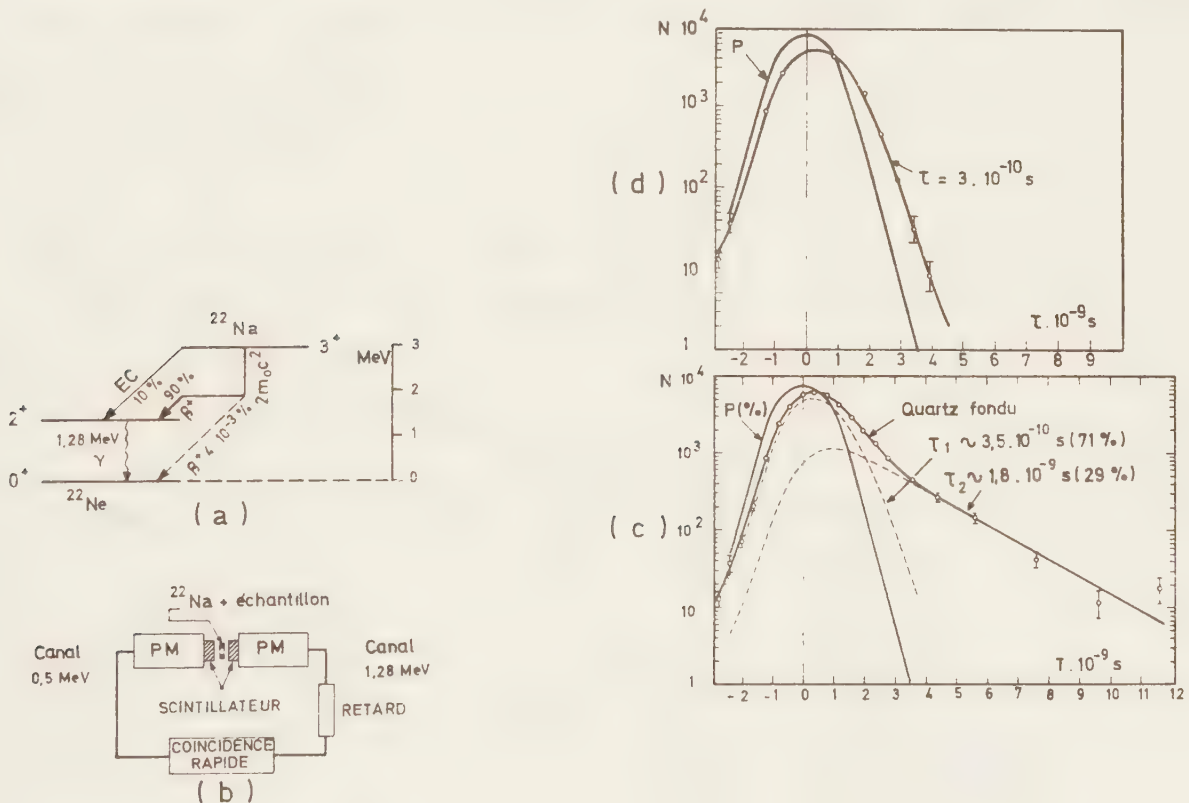


Fig. 4 - a - Schéma de désintégration du ^{22}Na
 b - Schéma de principe du dispositif de mesure du temps de vie du positon
 c - Spectre de temps de vie du positon dans le quartz fondu : la composante τ_1 caractérise l'annihilation libre la composante τ_2 l'annihilation de l'O - Ps pick-off
 d - Spectre en temps de vie du quartz cristallin où une seule vie est résolue

III.3 - Corrélation angulaire des photons d'annihilation

La caractéristique des photons d'annihilation accessible avec la meilleure précision instrumentale est leur corrélation angulaire. La mesure de leur énergie, même avec les détecteurs les mieux résolus, est en effet beaucoup trop imprécise.

Si p_z est la composante de la quantité de mouvement sur l'axe perpendiculaire à la direction de l'un des γ de l'électron annihilé : θ l'angle de divergence entre les deux gammas (figure 5), nous avons :

$$p_z = mc \sin \theta \simeq mc \theta \quad (8)$$

Deux détecteurs, l'un fixe, l'autre mobile, sont disposés de part et d'autre de l'ensemble source-échantillon. Deux longues fentes parallèles collimatrices définissent l'angle solide sous lequel est vu l'échantillon par les détecteurs.

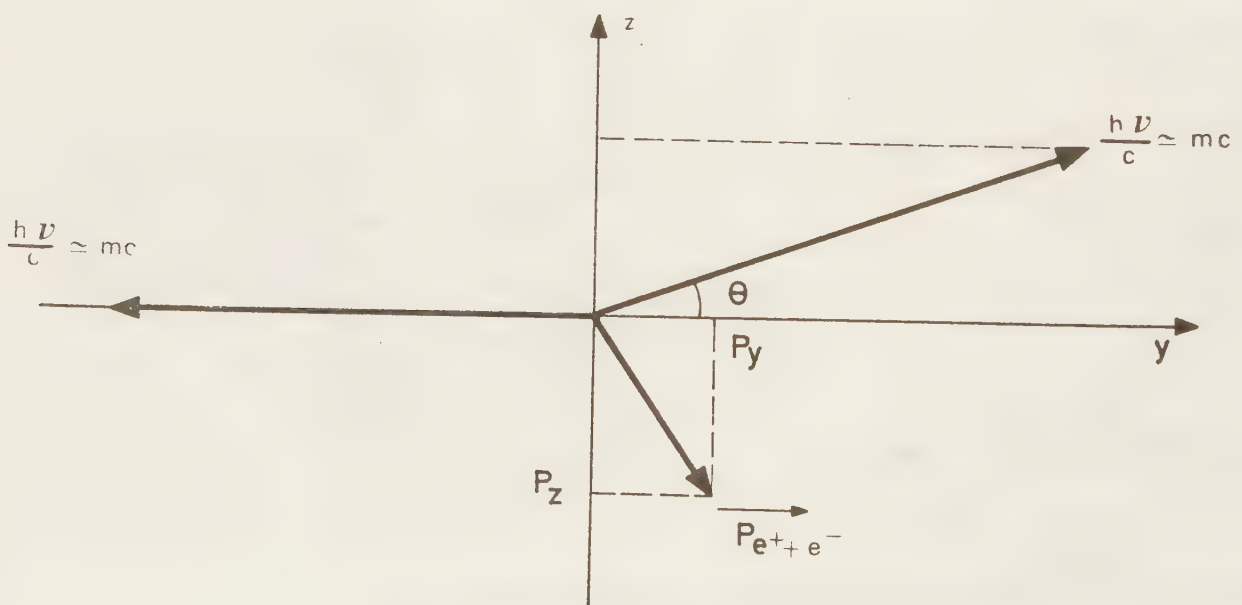
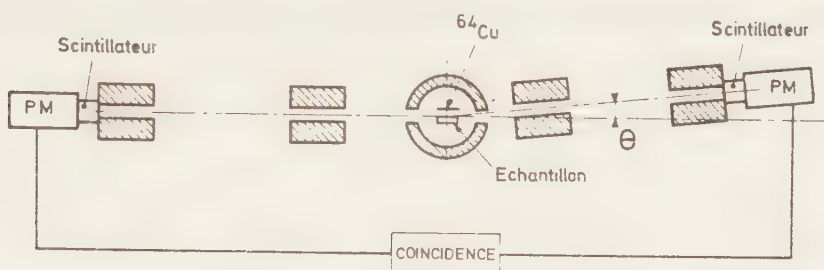


Fig. 5 - Conservation de la quantité de mouvement

C'est cette technique de corrélation angulaire que nous avons utilisée dans notre étude de l'annihilation du positon dans les isolants.

La figure 6 a schématise le dispositif expérimental.

Fig. 6 a



Ce dispositif expérimental fournit le nombre N de γ en coïncidence qui divergent de l'angle θ défini par la position du détecteur mobile par rapport à l'ensemble fixe-échantillon.

Si $\rho(p)$ est la densité dans l'espace des moments des paires d'annihilation électron-positon, la distribution des coïncidences mesurées par l'appareillage est :

$$N(p_z) = N(mc\theta) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \rho(p) dp_x dp_y = 2\pi \int_{p_z}^{\infty} \rho(p) p dp$$

pour $\rho(p) = \text{Cte}$ quand $p \leq p_F$, comme c'est le cas dans un gaz d'électrons libres, la courbe de corrélation angulaire observée est une parabole inversée (figure 6 b).

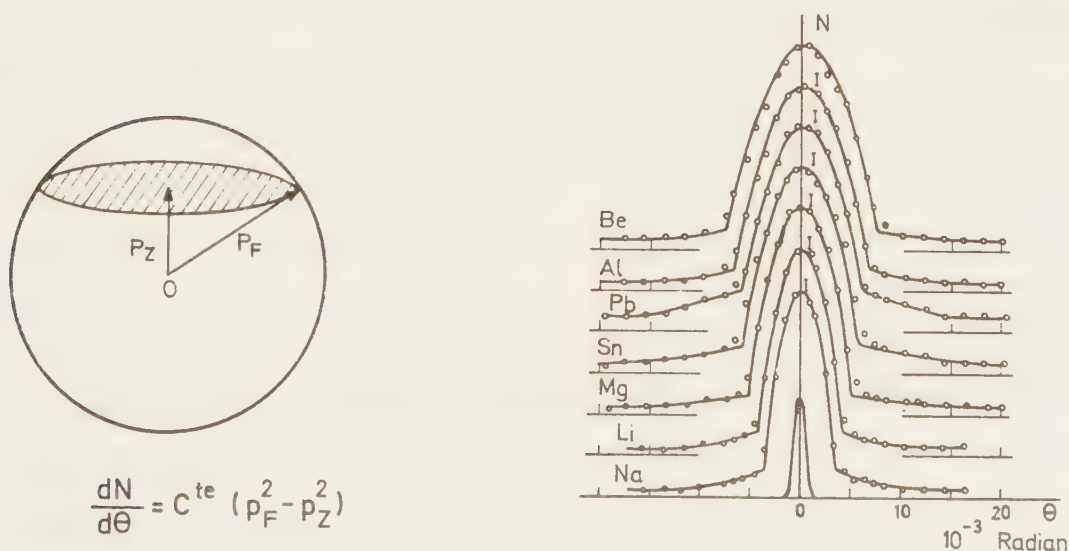


Fig. 6 b - Distribution angulaire des γ d'annihilation dans un gaz d'électrons libres

S'il y a formation de positonium dans l'échantillon, le p-Ps formé se manifeste par un pic étroit qui vient se superposer à la distribution large des gammas d'annihilation (figure 6 c). La surface de ce pic rapportée à la surface totale fournit la proportion de p-Ps formé.

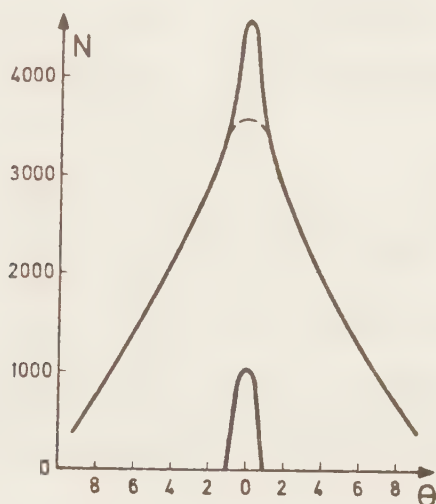


Fig. 6 c - La courbe représente la distribution des γ d'annihilation du positon dans une poudre de MgO. La composante étroite caractéristique du parapositonium soustraite de la composante large est reportée au bas de la figure

IV - Annihilation du positon dans les cristaux

IV.1 - Distributions angulaires observées

Dans un solide, le positon peut s'annihiler soit avec des électrons de conduction, soit avec des électrons liés.

Dans les métaux simples alcalins, aluminium, les électrons de conduction peuvent être traités comme un gaz d'électrons libres et les courbes de corrélation angulaire mesurées sont des paraboles inversées en excellent accord avec la théorie / 17 /. Dans ce cas, l'annihilation du positon avec les électrons liés est très peu probable et la composante large qui en résulte dans la courbe de corrélation angulaire peut être facilement distinguée

de la composante parabolique. Il n'en est pas de même dans les autres métaux où l'importante contribution des électrons du coeur tend à masquer la composante parabolique dont la présence n'est décelée que par un brusque changement de pente à

$$\theta = \frac{p_F}{mc}$$

Les tentatives / 18 / pour prévoir théoriquement la distribution angulaire due à l'annihilation avec les électrons du coeur dans les métaux n'ont pas, jusqu'à ce jour, été pleinement couronnées de succès et, de ce fait, l'analyse des courbes de corrélation angulaire en ses diverses composantes demeure encore imprécise. Dans les isolants où tous les électrons sont liés, il n'existe pas de théorie générale présidant la distribution angulaire des gammas d'annihilation.

IV.2 - Processus "Umklapp"

Dans un cristal, la fonction d'onde de la paire électron-positon peut être décrite par une fonction de Bloch de la forme $\Phi(\vec{k}, \vec{r}) e^{i \vec{k} \cdot \vec{r}}$.

$\Phi(\vec{k}, \vec{r})$ étant une fonction périodique de période égale à celle du réseau direct et où $\vec{r}$ est le vecteur position du centre de gravité de la paire positon-électron et $\vec{k}$ le vecteur moment associé au déplacement, la distribution des moments due à l'annihilation de ce type sera :

$$\rho_k(p) = \left| \int_{\text{cristal}} \Phi(\vec{k}, \vec{r}) e^{i \vec{k} \cdot \vec{r}} e^{-i \vec{p} \cdot \vec{r}} d\vec{r} \right|^2 \quad (9)$$

La fonction $\Phi(\vec{k}, \vec{r})$ étant périodique, nous pouvons réduire le domaine de l'intégrale à l'intérieur d'une cellule unité et sommer sur toutes les cellules du cristal. La distribution devient :

$$\rho_k(p) = \left| \left(\sum_N e^{-i (\vec{p} - \vec{k}) \cdot \vec{d}_N} \right) \int_{\text{cellule}} (e^{-i (\vec{p} - \vec{k}) \cdot \vec{r}} \Phi(\vec{k}, \vec{r}) d\vec{r}) \right|^2 \quad (10)$$

où $\vec{d}_N$ est un vecteur du réseau direct.

Pour un cristal qui contient N atomes, si V_c^* est le volume de la maille du réseau réciproque, la fonction $\left(\sum_N\right)^2$ apparaît sous la forme d'une somme de fonctions chaque fois que

$$\vec{p} - \vec{k} = \frac{2\pi n}{d_n} = n \vec{G}$$

$\vec{G}$ étant un vecteur du réseau réciproque.

La distribution des moments peut s'écrire :

$$\rho_k(p) = NV_c^* \sum_G \left| \int_{\text{cellule}} e^{-i \vec{G} \cdot \vec{r}} \Phi(\vec{k}, \vec{r}) d\vec{r} \right|^2 \delta(\vec{p} - \vec{k}, \vec{G}) \quad (11)$$

Posons

$$A_{\vec{G}}(\vec{k}) = \int_{\text{cellule}} e^{-i \vec{G} \cdot \vec{r}} \Phi(\vec{k}, \vec{r}) d\vec{r} \quad (12)$$

$\Phi(\vec{k}, \vec{r})$ étant normalisé à 1 à l'intérieur d'une cellule, nous avons :

$$\rho_k(p) = V^* \sum_G \left| A_{\vec{G}}(\vec{k}) \right|^2 \delta(\vec{p} - \vec{k}, \vec{G}) \quad (13)$$

Finalement, la distribution angulaire des deux gammas d'annihilation mesurée par un appareillage constitué de longues fentes parallèles suivant la direction de $p_z = \frac{\theta}{mc}$ est :

$$N(\theta) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} dp_x dp_y \sum_{\vec{k}} \sum_{\vec{G}} \left| A_{\vec{G}}(\vec{k}) \right|^2 \delta(\vec{p} - \vec{k}, \vec{G}) \quad (14)$$

Ainsi chaque paire positon-électron annihilée de moment $\vec{k}$ contribue à la distribution angulaire non seulement à $\vec{p} = \vec{k}$ mais aussi à $\vec{p} = \vec{k} + \vec{G}$ (processus "Umklapp"⁽⁺⁾) avec une intensité relative $\left| A_{\vec{G}}(\vec{k}) \right|^2$.

(+) L'usage de cette expression a été proposé par BERKO/ 19 / pour désigner ce type d'annihilation.

La contribution de ces processus "Umklapp" dans les courbes de corrélation angulaire est très faible et jusqu'à ce jour n'a pu être clairement identifiée expérimentalement. BERKÖ et al. / 19 / ont cependant observé dans le cuivre des modulations de très faible intensité aux grands angles, qui semblent être révélatrices de ces processus.

V - Etude projetée

V.1 - Mesure de la mobilité du positon

Au début de cette étude, nous nous proposons de mesurer la mobilité du positon dans les solides en étudiant l'influence d'un champ électrique sur les courbes de corrélation angulaire. Cet effet doit se traduire par une augmentation de l'intensité de la distribution aux grands angles.

Cet effet prédit par la théorie / 20 / semble pouvoir être résolu expérimentalement puisqu'un effet analogue à celui-ci, l'influence de la température sur la distribution angulaire, a été observée par A.T. STEWART et al. / 4 / qui a pu ainsi mesurer la masse efficace du positon dans le sodium.

Le problème est de trouver le cas favorable dans lequel l'effet de champ électrique peut être résolu sans ambiguïté.

V.2 - Choix des échantillons

L'application d'un champ électrique sur l'échantillon nécessite l'utilisation d'échantillons isolants. Or dans ceux-ci, plusieurs processus d'annihilation sont possibles. Il ressort en effet des mesures de temps de vie que, outre l'annihilation libre du positon, sont susceptibles d'intervenir d'autres processus d'annihilation qui peuvent différer, non seulement suivant la nature du cristal, mais encore suivant ses caractéristiques et, en particulier ses imperfections.

Ainsi, dans les cristaux moléculaires, une fraction des positons forme du positonium avant de s'annihiler et cette fraction est très variable suivant le degré de perfection du cristal et en outre est modifiée par l'application d'un champ électrique.

A l'opposé, dans les cristaux ioniques, la formation de positonium est énergétiquement interdite / 9 /. L'étude du temps de vie met cependant en évidence dans les halogénures alcalins l'existence de deux processus d'annihilation qu'il est toutefois impossible de distinguer en corrélation angulaire.

Ce deuxième processus d'annihilation semble résulter du piégeage du positon par certaines imperfections du cristal notamment les vacances d'ions positifs / 16 /.

Ainsi apparaît l'importance du caractère ionique de la liaison cristalline en ce qui concerne la formation de positonium et du rôle joué par certains types de défauts. Ce double aspect de l'annihilation dans les isolants est encore plus marquée dans certains oxydes tels que MgO , BeO , SiO_2 , Al_2O_3 où la formation de positonium observée pour des échantillons polycristallins présentant une structure très désordonnée / 21 / semble interdite pour des monocristaux où la mesure d'une seule vie moyenne du positon suggère un processus d'annihilation unique. Les courbes de corrélation angulaire jusqu'alors publiées pour ces cristaux / 22, 23, 24, 25, 26 / ne présentant pas de singularités, semblent confirmer cette interprétation.

Il nous a donc paru judicieux d'entreprendre une étude de l'influence du champ électrique sur l'annihilation du positon dans ce type de cristaux isolants où l'existence supposée d'un seul processus d'annihilation permettait d'espérer une analyse de la corrélation angulaire capable de fournir des informations sur la mobilité du positon dans de tels isolants.

Le quartz, à mi-chemin dans les cristaux ioniques et les cristaux moléculaires, nous a paru constituer un bon choix pour commencer cette étude. Pour la mener à bien,

nous avons conçu et réalisé un appareillage capable de mesurer la corrélation angulaire des gammas d'annihilation avec une résolution optimum et permettant d'obtenir rapidement des résultats avec une bonne précision statistique.

Cependant, les premiers résultats obtenus avec des échantillons de quartz en l'absence de champ électrique, ont montré l'existence d'une structure fine surprenante jamais encore observée. L'objet de notre étude s'en est trouvé totalement modifié et nous nous sommes dès lors attachés à étudier systématiquement ce nouvel effet.

DEUXIEME PARTIE : Dispositif expérimental

I - Banc de corrélation angulaire

I.1 - Description générale

I.2 - Ensemble porte-source échantillon

I.3 - Dispositif d'alignement des fentes collimatrices

II - Source de positons

III - Résolution angulaire du banc de corrélation . Corrections

Dimensions des échantillons

IV - Dispositif électronique de détection en coïncidence

IV.1 - Introduction

IV.2 - Description générale

IV.3 - Mise en forme rapide

IV.4 - Tests et résultats expérimentaux

V - Enregistrement et dépouillement des données expérimentales

VI - Vérifications du dispositif expérimental

CHAPITRE II

DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Le banc de corrélation angulaire a été réalisé, sur nos indications, par les Ateliers Centraux de Saclay, et l'électronique associée au dispositif de détection a été conçue par nous-mêmes au Laboratoire de l'I.N.S.T.N.

La figure 7 schématise cette installation.

I - Banc de corrélation angulaire

La conception de ce banc de corrélation angulaire résulte d'un certain nombre de compromis afin d'optimiser à la fois la résolution angulaire et l'efficacité de détection. Il est souhaitable de travailler avec une source de positons d'activité aussi grande que possible, mais le choix dans ce domaine est relativement restreint. Seuls le Na^{22} et le Cu^{64} sont en pratique utilisables. Si la longue période du sodium est un argument favorable à l'emploi de cet émetteur e^+ , l'activité restreinte dont il est possible de disposer limite cet avantage dans la mesure où le temps d'expérience doit demeurer raisonnable. Le cuivre, par contre, permet d'obtenir des activités en positon de 20 à 100 fois plus fortes, mais sa courte période (12,8 h) est un handicap certain. Il présente cependant la particularité d'émettre à la fois des électrons et des positons ce qui constitue un avantage pour étudier des isolants que le bombardement par les seuls positons tend à charger électrostatiquement.

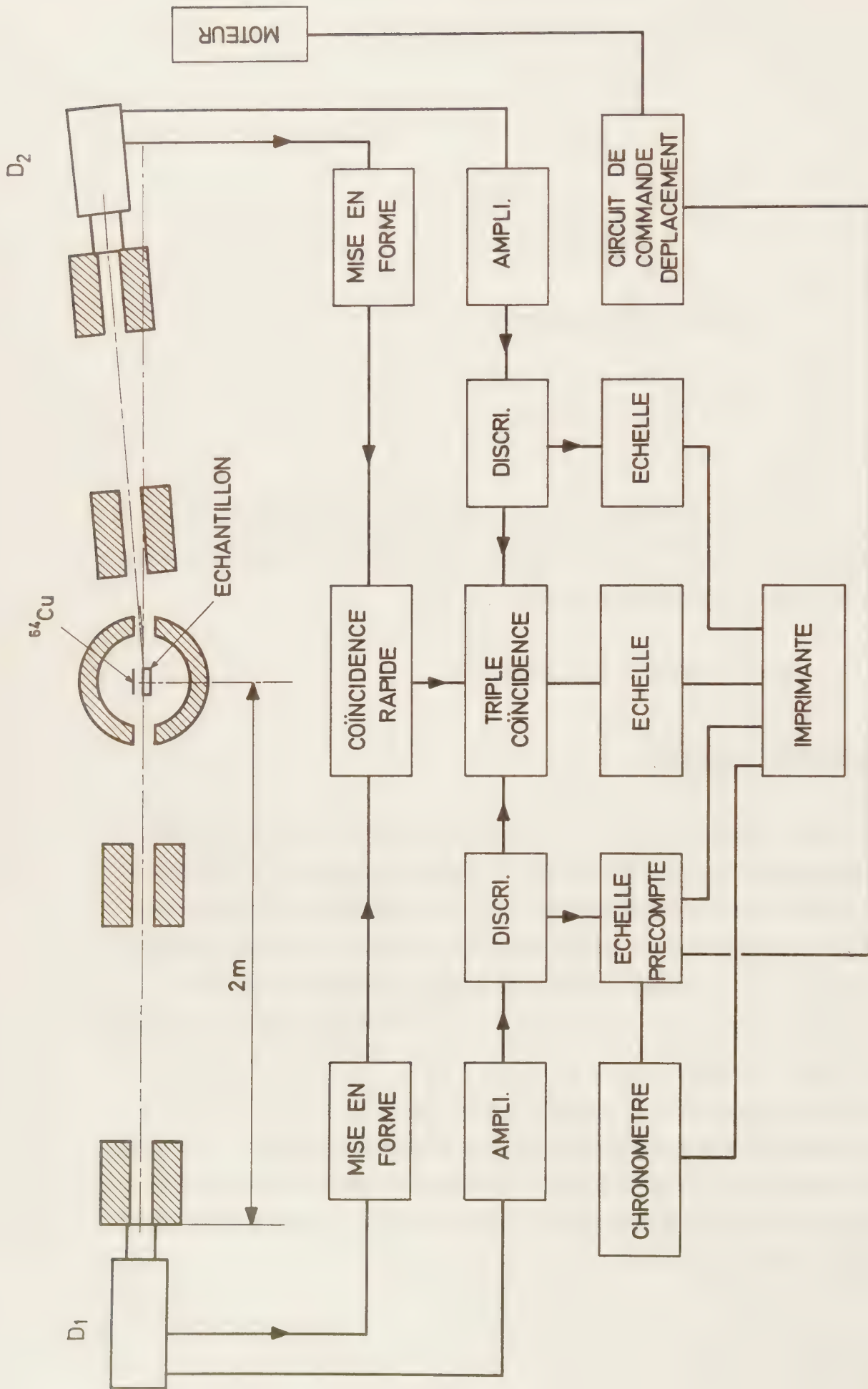


Fig. 7 - Schéma du banc de corrélation et dispositif de principe de l'électronique

C'est donc sur le cuivre que notre choix s'est fixé. Son emploi très limité dans le temps (24 à 48 heures), la dimension des détecteurs utilisés et les problèmes de réalisation sur le plan mécanique fixent un certain nombre de caractéristiques du banc de corrélation angulaires, telles que distance source-détecteur et largeur minimum des fentes collimatrices. Ces caractéristiques étant définies, un soin particulier doit être apporté à la géométrie interne, de manière à optimiser le nombre de positons s'annihilant dans l'échantillon, tout en éliminant les gammas d'annihilation parasites.

Cette géométrie étant connue il est facile de concevoir le blindage de protection en fonction des impératifs de géométrie ainsi déterminés. Etant donné l'ordre de grandeur des angles à mesurer (milliradian), un dispositif d'alignement très précis doit en outre être prévu directement sur le banc de corrélation angulaire.

1.1 - Description générale

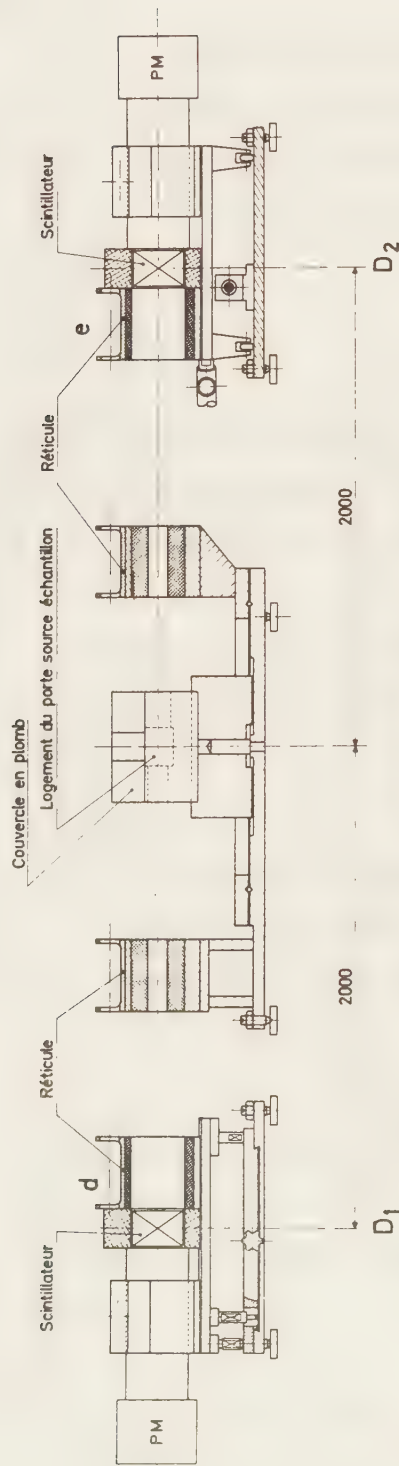
Un bloc de béton supporte la partie centrale source-échantillon de l'enceinte de protection en plomb. A deux mètres de part et d'autre de la partie centrale, deux blocs de béton supportent les détecteurs et leur protection en plomb (figure 8).

Le détecteur de gauche D_1 est fixe. Il est monté sur une platine ajustable par vis micrométrique pour faciliter son positionnement. Une couronne en plomb entoure le scintillateur et le protège des rayonnements parasites.

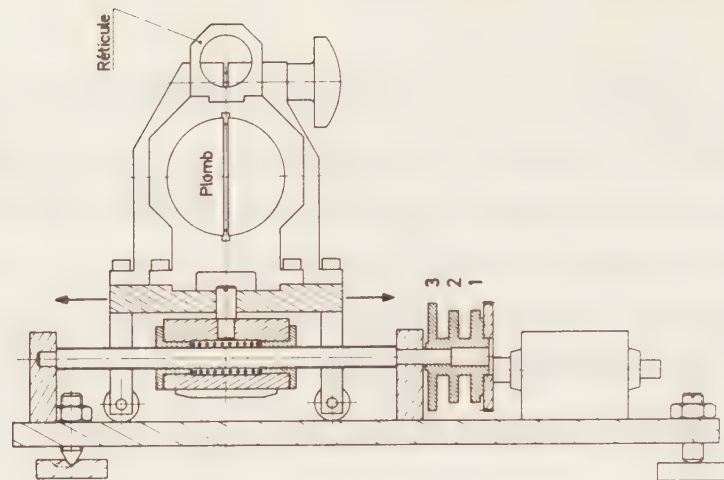
Une fente collimatrice de 60 mm de hauteur, ménagée dans un bloc de plomb de 10 cm de longueur, et placée devant le scintillateur, définit l'angle solide sous lequel le détecteur voit l'échantillon. Sa largeur est variable : 0,5 , 1 ou 2 mm suivant la résolution angulaire cherchée.

Le détecteur de droite D_2 et la fente collimatrice sont montés sur un chariot mobile dont la rotation autour de l'échantillon est guidée par un bras de levier. Son déplacement horizontal s'effectue par une vis sans fin. Un moteur triphasé à frein électro-

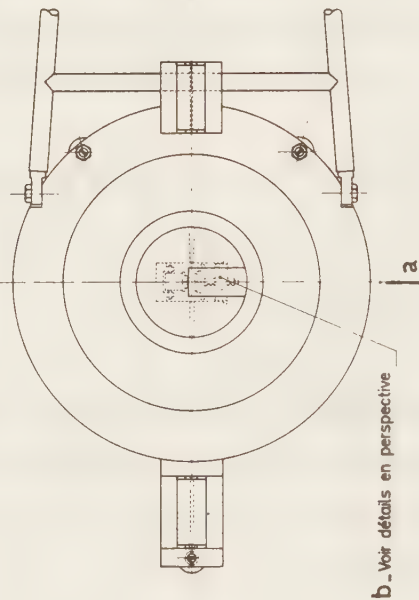
Coupe transversale



Coupe du mécanisme de déplacement

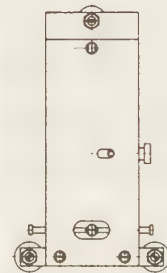


Vue de dessus



Support du détecteur fixe

Détail du mécanisme d'alignement



Fonctionnement des cames suivant la largeur des fentes collimatrices utilisées

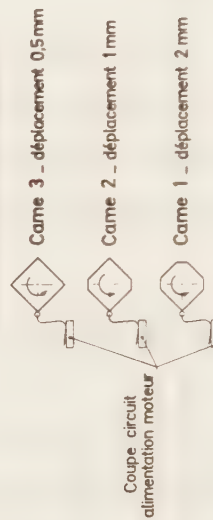


Fig. 8 - Vue d'ensemble du banc de corrélation angulaire

magnétique assure la rotation de la vis tandis que des cames permettent de sélectionner la longueur du déplacement : 0,5 , 1 ou 2 mm suivant la fente collimatrice utilisée. Son positionnement rigoureux est assuré par des micro-contacts liés aux cames qui commandent l'alimentation du moteur.

Les dispositifs de protection et de fentes interchangeable sont identiques à ceux du détecteur mobile.

Le bloc central supporte :

- une couronne horizontale (a), mobile autour de son axe vertical qui supporte l'extrémité du bras de levier.
- un ensemble porte-source échantillon (b) contenu dans un cylindre en plomb.
- deux fentes collimatrices taillées dans un bloc de plomb, l'une fixe (d), l'autre mobile (e), solidaire de la couronne, disposées de façon à éliminer les rayonnements parasites.
- une enceinte à vide associée à un groupe de pompage permettant de réaliser un vide de l'ordre de 10^{-5} mm de mercure.
- un chateau de plomb entourant toute cette partie centrale.

1.2 - Ensemble porte-source échantillon (figure 9)

La géométrie de l'ensemble porte-source échantillon et cylindre en plomb a été calculée pour que la distance source-échantillon soit minimale et que les gammas d'annihilation parasites ne soient pas détectés. Ces gammas proviennent de l'annihilation du positon soit dans la source elle-même, soit dans l'environnement porte-source ou protection de plomb. La géométrie du cylindre en plomb, supportant le porte-source et l'échantillon, est conçue de façon que tout γ provenant de l'annihilation du positon hors de l'échantillon traverse au moins une épaisseur de 10 cm de plomb avant d'atteindre un détecteur.

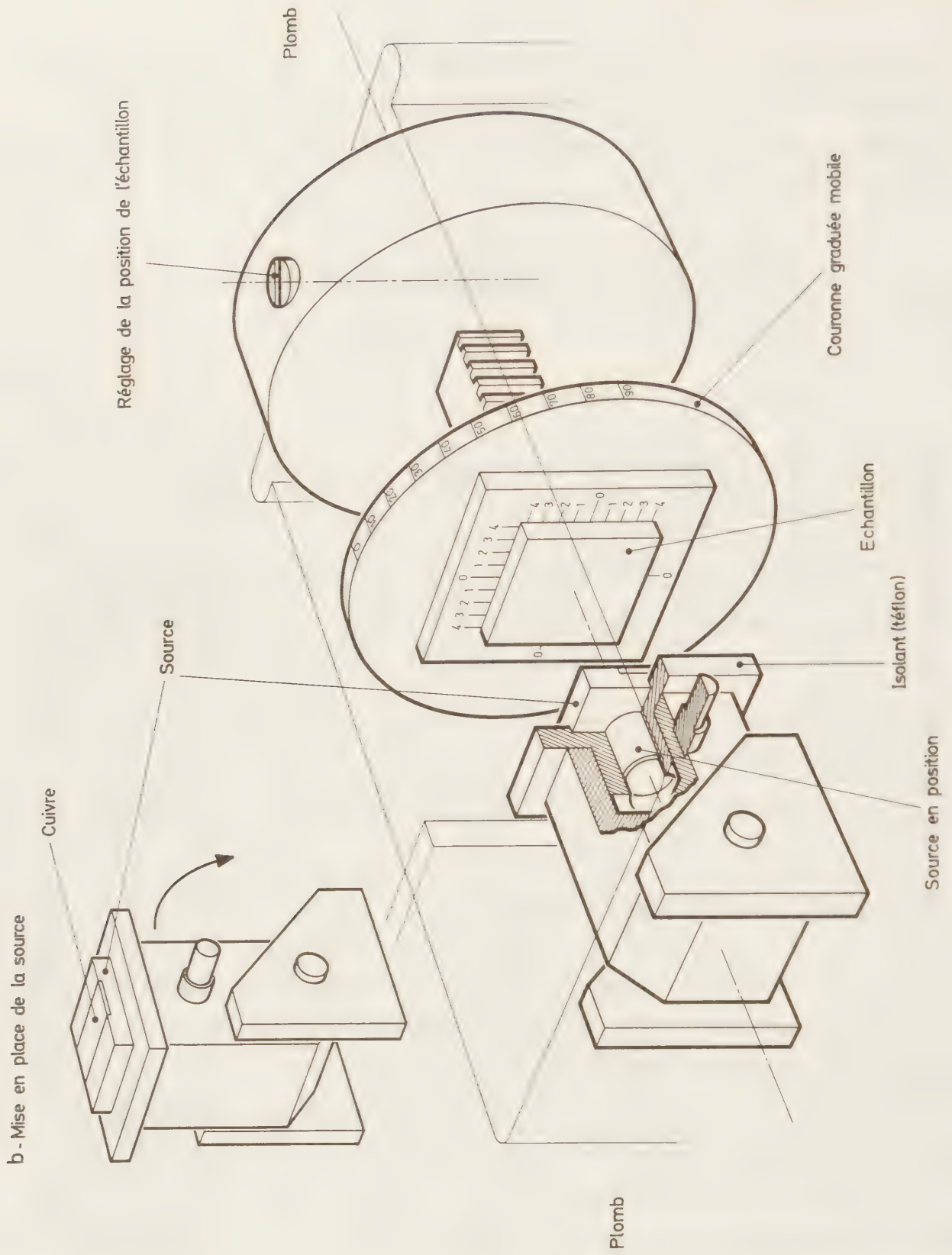


Fig. 9 - Détails de la partie centrale porte source échantillon

Le porte-échantillon se compose d'une couronne verticale (a) sur laquelle est collé l'échantillon et d'un système à crémaillère qui permet le positionnement de la face verticale de l'échantillon par rapport au plan de détection défini par l'alignement de l'ensemble des fentes collimatrices.

Différentes couronnes sont utilisées pour travailler en température ou en présence d'un champ électrique.

Le porte-source a été réalisé mobile autour d'un axe horizontal pour faciliter la mise en place de la source. Celle-ci comporte un têtou en aluminium et un logement, prévu pour ce dernier, qui apparaît en position verticale (figure 9 b). Il suffit d'introduire la source et de faire pivoter le porte-source en position horizontale pour que la source soit positionnée.

Une partie du porte-source est en téflon, ce qui permet d'isoler électriquement la source de la masse pour des expériences avec un champ électrique.

Le chateau en plomb entourant la partie centrale sert de protection contre les rayonnements gamma lors de la manipulation de la source. Il comporte un hublot en verre au plomb qui permet de voir la partie centrale et d'effectuer le transfert de la source du chateau de plomb de livraison au porte-source en demeurant à l'abri du rayonnement de la source.

1.3 - Dispositif d'alignement des fentes collimatrices

Chaque fente collimatrice supporte une mire composée de deux réticules à fils croisés, dont la position relative est identique par construction pour toutes les fentes. Nous alignons la lunette d'un cathétomètre sur un axe défini par une pointe matérialisant l'axe de rotation du détecteur mobile et par la mire de la fente collimatrice fixe de la partie centrale. Le positionnement du détecteur fixe est réglé par l'intermédiaire de vis micrométriques de manière à faire coïncider sa mire avec l'axe du cathétomètre réglé précédemment.

Nous appelons "axe principal" l'axe qui joint le milieu des fentes collimatrices lorsque l'alignement est réalisé. Par construction, le détecteur mobile se déplace horizontalement de part et d'autre de l'axe principal.

L'alignement est vérifié périodiquement afin de déceler une éventuelle dérive (chocs accidentels).

II - Source de positons

Nous avons utilisé du cuivre pour réaliser une source de positons intense. En effet, grâce à la pile EL 3, nous avons irradié ce cuivre dans un flux de neutrons thermiques de l'ordre de $2 \cdot 10^{13}$ neutrons par seconde et par centimètre carré. La durée d'irradiation est de 48 heures et l'activité du radionucléide obtenu, ^{64}Cu , est de l'ordre de 1 curie, soit une activité en positon de 200 mCurie pour 0,1 g de cuivre.

Le ^{64}Cu , dont le schéma est représenté sur la figure 10, a une période de 12,8 h et est émetteur de positons (19 %) et d'électrons (38 %).

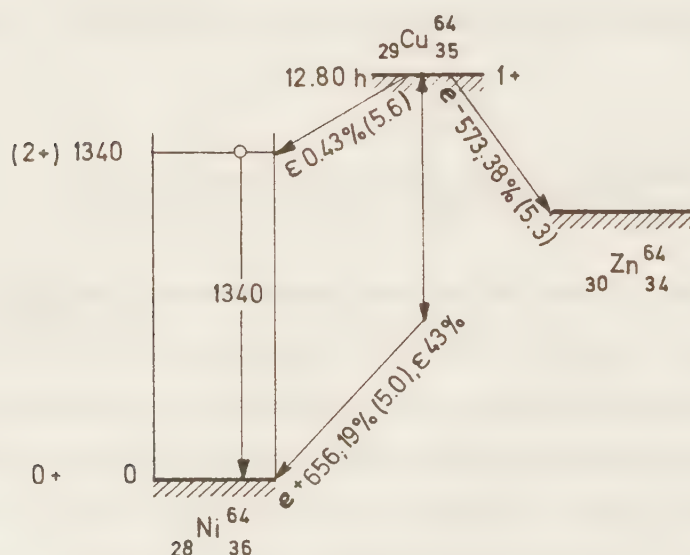


Fig. 10 - Schéma de désintégration du Cu^{64}

La feuille de cuivre de $10 \times 5 \times 0,2$ mm est sertie dans un support d'aluminium. Une heure après l'extraction de la source hors de la pile, l'activité de l'aluminium est devenue négligeable.

Pour certaines expériences exigeant une très grande précision statistique, nous avons utilisé le flux de neutrons de la pile OSIRIS ($2 \cdot 10^{14}$ neutrons thermiques/cm²/s et 10^{13} neutrons rapides/cm²/s. Le support de source est alors en titane car l'aluminium, sous l'effet des neutrons rapides, forme du ^{24}Na de période très voisine de celle du ^{64}Cu et qui émet un gamma de 2,7 MeV. L'activité obtenue est de 8 Curies.

III - Résolution angulaire

Nous devons considérer l'influence de la résolution angulaire finie de l'appareillage sur les résultats obtenus. Le calcul de la résolution fait intervenir la largeur des fentes collimatrices, les dimensions de l'échantillon et la pénétration des positons dans celui-ci. Pour une fente de largeur d et une source ponctuelle W , l'allure de la fonction de résolution est un triangle isocèle de base $2d$.

Soit la figure 11 où D_1 est la fente collimatrice de largeur d et W la source ponctuelle située à une distance L .

Supposons une seconde fente collimatrice D_2 , mobile dans le plan vertical de la figure, située à une distance L symétrique de D_1 par rapport à W . Lorsque D_2 se déplace verticalement, le nombre de coïncidences est proportionnel linéairement à ce déplacement pour atteindre une valeur maximale lorsque D_2 est rigoureusement à 180° . La longueur du déplacement de D_2 pour lequel des coïncidences sont observées, est $2d$ et l'allure de la fonction de résolution est bien un triangle isocèle de base $2d$.

Supposons maintenant que la source ait une dimension finie. Nous aborderons ce calcul en faisant l'approximation suivante : la distribution de la pénétration des positons dans l'échantillon est uniforme sur une épaisseur e .

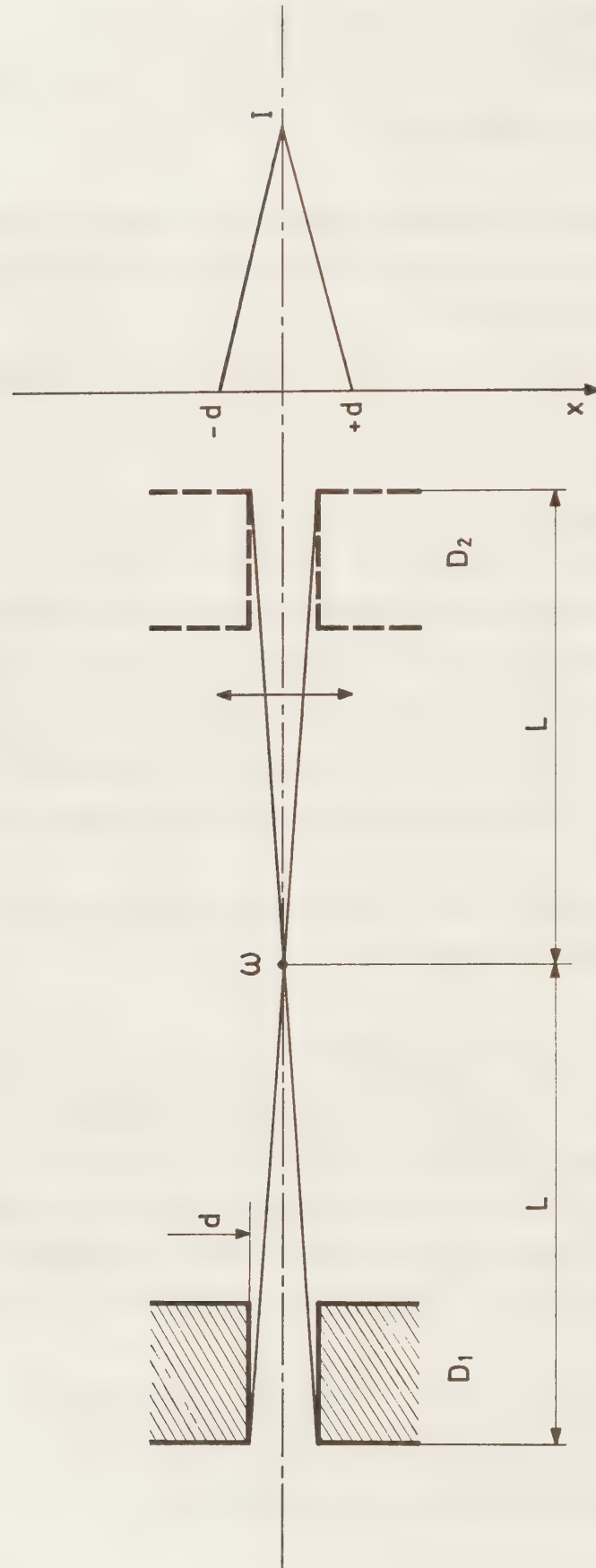


Fig. 11 - Fonction de résolution pour une source ponctuelle

Considérons la figure 12 où d est la largeur des fentes collimatrices, e la profondeur de la pénétration des positons, L la distance échantillon-détecteur, x , y et z un système de coordonnées centré sur l'échantillon.

Suivant l'axe z , pour une source ponctuelle, l'allure de la fonction de résolution est un triangle isocèle de base $2d$. La généralisation à un échantillon d'épaisseur finie e se fait en tenant compte de la contribution de chaque point de la source. La fonction représentant un triangle isocèle centré en $z = a$ et de hauteur unité est

$$R_o(z, a) = \begin{cases} 1 - \frac{|z - a|}{d} & |z - a| < d \\ 0 & |z - a| > d \end{cases} \quad (15)$$

La fonction de résolution est alors :

$$R(z) = \int_{-e/2}^{+e/2} \left(1 - \frac{|z - a|}{d}\right) \frac{da}{d} \quad (16)$$

En prenant $d = 1 \text{ mm}$, $e = 0,2 \text{ mm}$, $R(z)$ est tracé sur la figure 13. Cette fonction est très proche d'une fonction gaussienne tracée en pointillé. La largeur tracée à mi-hauteur, $\Gamma_{1/2} = \frac{d}{L} \left(1 + \frac{e}{2L}\right)$ est approximativement de $0,55 \text{ mrad}$. Cette valeur est réduite à $0,27 \text{ mrad}$ avec les fentes collimatrices de $0,25 \text{ mm}$ de largeur.

La correction des courbes expérimentales doit être envisagée dans les parties très incurvées et pour des distributions très étroites. Nous montrerons sur les courbes expérimentales obtenues au cours de cette étude que cette correction est faible, même dans le cas du quartz synthétique qui présente un pic étroit.

Dans le plan vertical, suivant y , la hauteur de la source et les fentes collimatrices introduisent également une fonction de résolution identique à $R(z)$. Si

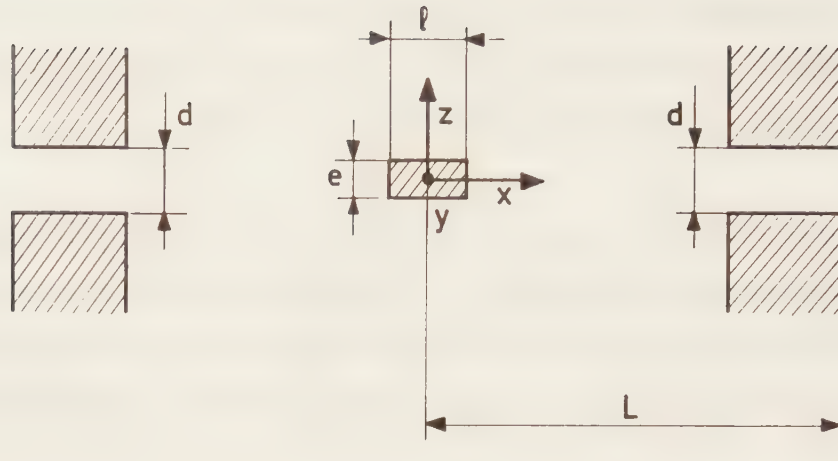


Fig. 12 - Schémas de principe pour le calcul de la résolution angulaire

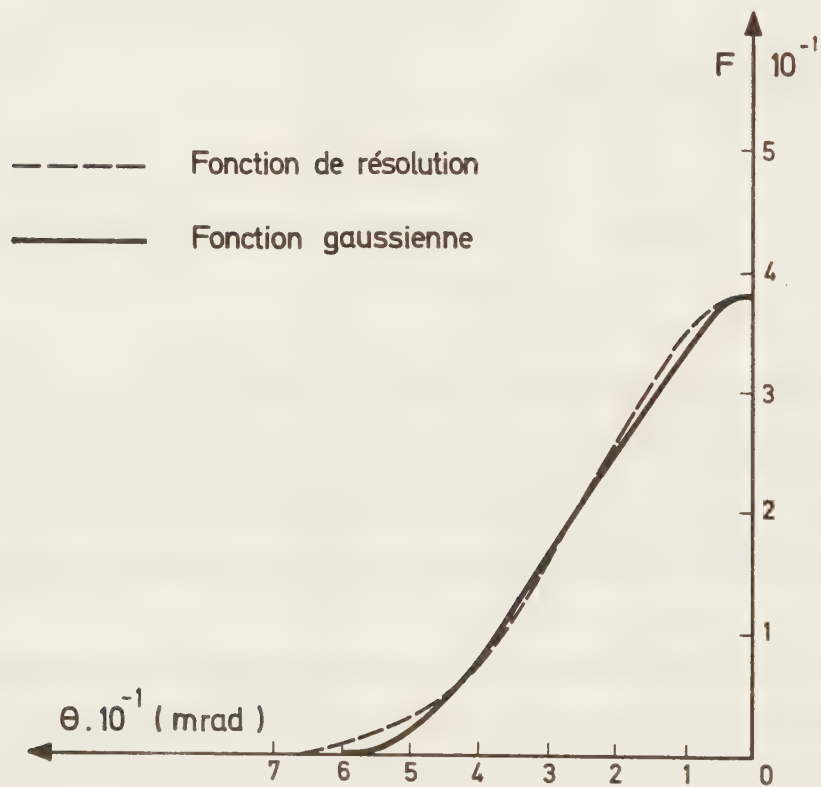


Fig. 13 - Fonction de résolution angulaire calculée pour :
 $d = 1\text{mm}$ et $e = 0,2\text{ mm}$

H est la hauteur des fentes collimatrices, h la hauteur de l'échantillon, la largeur à mi-hauteur de cette fonction est :

$$\Gamma_{\frac{1}{3}} = \frac{H}{L} \left(1 + \frac{h}{2L}\right)$$

Si $H = 60 \text{ mm}$, $h = 1 \text{ cm}$, $\Gamma_{\frac{1}{3}} = 32 \text{ mrad}$.

Cette valeur est beaucoup plus grande que chaque distribution angulaire observée ($\Gamma_{1/2} < 10 \text{ mrad}$) et la hauteur finie des fentes collimatrices ne modifie pratiquement pas l'allure des courbes obtenues.

La limite supérieure de la hauteur h de l'échantillon par rapport à la hauteur H des fentes collimatrices est définie simplement par : $10 + \frac{h}{L} < \frac{H}{L}$ d'où $h < 40 \text{ mm}$. La hauteur de nos échantillons est en général voisine de 10 mm.

La longueur de l'échantillon introduit une indétermination de l'angle solide sous lequel est vue la fente collimatrice, de l'ordre de $\delta \theta \simeq L \cdot 10^{-3} \text{ mrad}$ (L en mm). En choisissant une longueur voisine du centimètre, cet effet est pratiquement inexistant.

Pour définir l'épaisseur de l'échantillon, nous allons étudier la pénétration des positons dans celui-ci.

Le comportement du positon étant identique à celui de l'électron, nous appliquons les résultats obtenus pour ce dernier. La pénétration maximum des électrons dans une cible s'écrit, d'après la formule empirique de KATZ et PENFOLD / 27 / :

$$R_o (\text{mg/cm}^2) = 412 E^n \quad (17)$$

E étant l'énergie des électrons en MeV dans une bande de 0,01 MeV à 3 MeV et n une expression de la forme $n = 1,265 - 0,0954 \ln E$.

Remplaçons dans cette formule E par E_m , E_m étant l'énergie maximum du spectre continu de positons pour obtenir la longueur maximum de pénétration dans l'échantillon. Si $E_m = 0,5 \text{ MeV}$, l'équation (17) conduit à une valeur de $R_o = 164 \text{ mg/cm}^2$ et la pénétration maximum d_m est $d_m = \frac{R}{\rho}$ où ρ est la densité de l'échantillon.

Dans le cas du quartz où $\rho = 2,6 \times 10^3 \text{ mg/cm}^3$, $d_m = 0,063 \text{ cm}$.

Une épaisseur minimum de 1 mm sera en général suffisante pour l'ensemble des échantillons étudiés dont la densité est supérieure à 2 mg/cm^3 .

Les différentes considérations géométriques ou physiques discutées précédemment définissent les dimensions maximales des échantillons. Ces derniers sont collés sur la couronne du porte-source ; la face plane de l'échantillon à étudier est alors verticale. Un système à crémaillère fait coïncider la face verticale et l'axe principal. La distance source-échantillon est alors voisine de 3 mm.

Dans le cas de monocristaux, la face plane est un plan cristallographique déterminé par la méthode de Laüe.

IV - Ensemble électronique

IV.1 - Introduction

L'ensemble électronique doit présenter les caractéristiques suivantes :

- a) une très bonne stabilité. En particulier la largeur de la bande d'énergie choisie sur le détecteur fixe - qui sert de moniteur - ne doit subir aucune fluctuation.
- b) une bonne efficacité de détection pour obtenir une statistique convenable avec une seule source.
- c) une résolution électronique inférieure à 10 ns afin d'éliminer toute coïncidence fortuite.

La condition c) est facilement réalisable en utilisant des scintillateurs plastiques qui fournissent des impulsions rapides. Mais leur trop faible efficacité de détection ne permet pas de réaliser la condition b) et nous oblige à utiliser des scintillateurs NaI(Tl) de rendement 10 fois supérieur. Cependant, les impulsions délivrées sont beaucoup plus lentes et les circuits rapides associés sont délicats à réaliser.

IV.2 - Description

Un schéma synoptique du montage électronique est présenté figure 14.

Nous l'avons réalisé en adaptant aux impératifs de notre expérience le circuit proposé par BERTOLACCINI et al. / 18 /.

L'ensemble constitue un circuit de type lent-rapide. L'impulsion recueillie sur la 14^{ème} dynode de chaque photomultiplicateur (voie lente) est amplifiée, puis sélectionnée en amplitude à travers un sélecteur monocanal. L'impulsion délivrée par l'anode des photomultiplicateurs, aux bornes d'une résistance de $100\ \Omega$ (voie rapide) est mise en forme avant de pénétrer dans le circuit de coïncidence rapide.

La coïncidence des impulsions rapides commande la porte du circuit de coïncidences des voies lentes.

L'ensemble des circuits peut se décomposer ainsi :

- deux mises en forme rapides
- un circuit de coïncidence rapide
- deux amplificateurs avec passage à zéro
- deux analyseurs monocanaux
- un circuit de coïncidence des voies lentes et de la voie rapide.

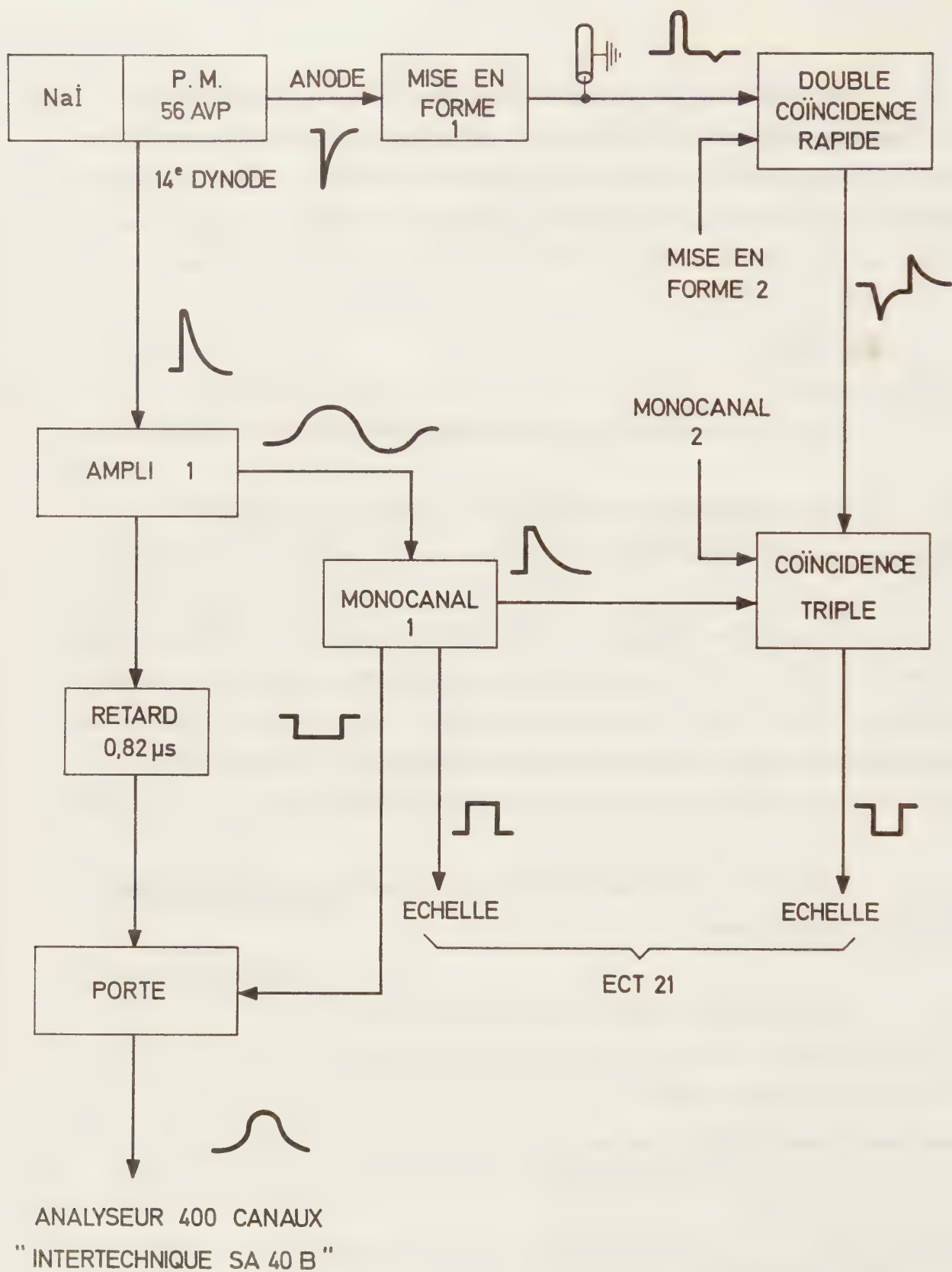


Fig. 14 - Diagramme de l'ensemble électronique

IV.3 - Mise en forme rapide (figure 15)

C'est l'élément essentiel du circuit. Toutes les impulsions délivrées par l'anode du photomultiplicateur doivent être calibrées en intensité et en largeur à mi-hauteur.

L'intensité définit le seuil de déclenchement du circuit de coïncidence rapide et la largeur caractérise la résolution électronique.

Le transistor T_1 sature les impulsions au-dessus d'un seuil défini par le bruit de fond du photomultiplicateur, ce qui permet d'obtenir des temps de montée identiques pour des impulsions de différentes énergies.

Les impulsions ayant une largeur différente sont mises en forme en durée par un stub court-circuit de longueur réglable. Avec une longueur de câble de 18 cm, la largeur des impulsions à mi-hauteur est de 2 ns et son amplitude de 280 mV.

IV.4 - Résultats expérimentaux

La détermination expérimentale de la résolution a été réalisée avec une source de ^{22}Na en retardant les voies lentes et rapides d'un des deux détecteurs par rapport à l'autre.

La variation du nombre de coïncidences en fonction du retard apporté est montrée figure 16. Lorsque les voies lentes sont seules utilisées, la résolution électronique définie par la largeur de la courbe à mi-hauteur est de 20 ns. Cette valeur est réduite à 4 ns grâce aux voies rapides avec cent pour cent d'efficacité.

Le nombre de coïncidences fortuites se calcule à partir de la formule :

$$N_c = \frac{2 \tau N_1 N_2}{t} \quad (18)$$

où N_1 et N_2 sont les nombres de coups sur chaque détecteur, τ la résolution expérimentale et t le temps d'enregistrement.

En utilisant des fentes de 2 mm et une source de 1 curie, le taux de comptage sur chaque voie est environ 50 000 c/m, soit un nombre de coïncidences fortuites égales à 0,3 c/m.

La valeur de la résolution choisie, 4 ns, est donc largement suffisante pour éliminer les coïncidences fortuites et constitue une marge de sécurité pour éviter les faibles dérives. Cette valeur ne représente pas la performance optimum de ce circuit dont la résolution limite que l'on peut espérer atteindre est de l'ordre de 1 à 2 ns. L'étude de ce circuit a été publiée sous forme de rapport C.E.A. / 29 /.

V - Enregistrement

Le détecteur mobile décrit un arc de cercle de 15 à 20 mrad de part et d'autre de l'axe principal. Ce déplacement est effectué pas à pas. Ce pas est égal à la largeur des fentes choisies. Le nombre de pas est préréglé. Lorsque ce nombre est atteint, le mouvement du détecteur s'inverse et un nouveau cycle recommence.

Le déplacement du détecteur mobile s'effectue au bout du temps nécessaire pour que le détecteur fixe ait enregistré un nombre d'impulsions prédéterminé. Cette technique permet de corriger automatiquement la décroissance de la source. Le nombre d'impulsions prédéterminé est de 50 000 en général. Le temps d'enregistrement pour chaque position est d'environ 1' au début de l'expérience et de 2' au bout de 12 heures.

Lorsque le nombre de 50 000 impulsions est atteint, les valeurs affichées sur les échelles de comptage sont imprimées et une impulsion est envoyée sur le tiroir de commande de positionnement du détecteur mobile. Le détecteur est déplacé d'un pas. A la fin de ce déplacement, une impulsion remet les échelles à zéro et l'enregistrement recommence.

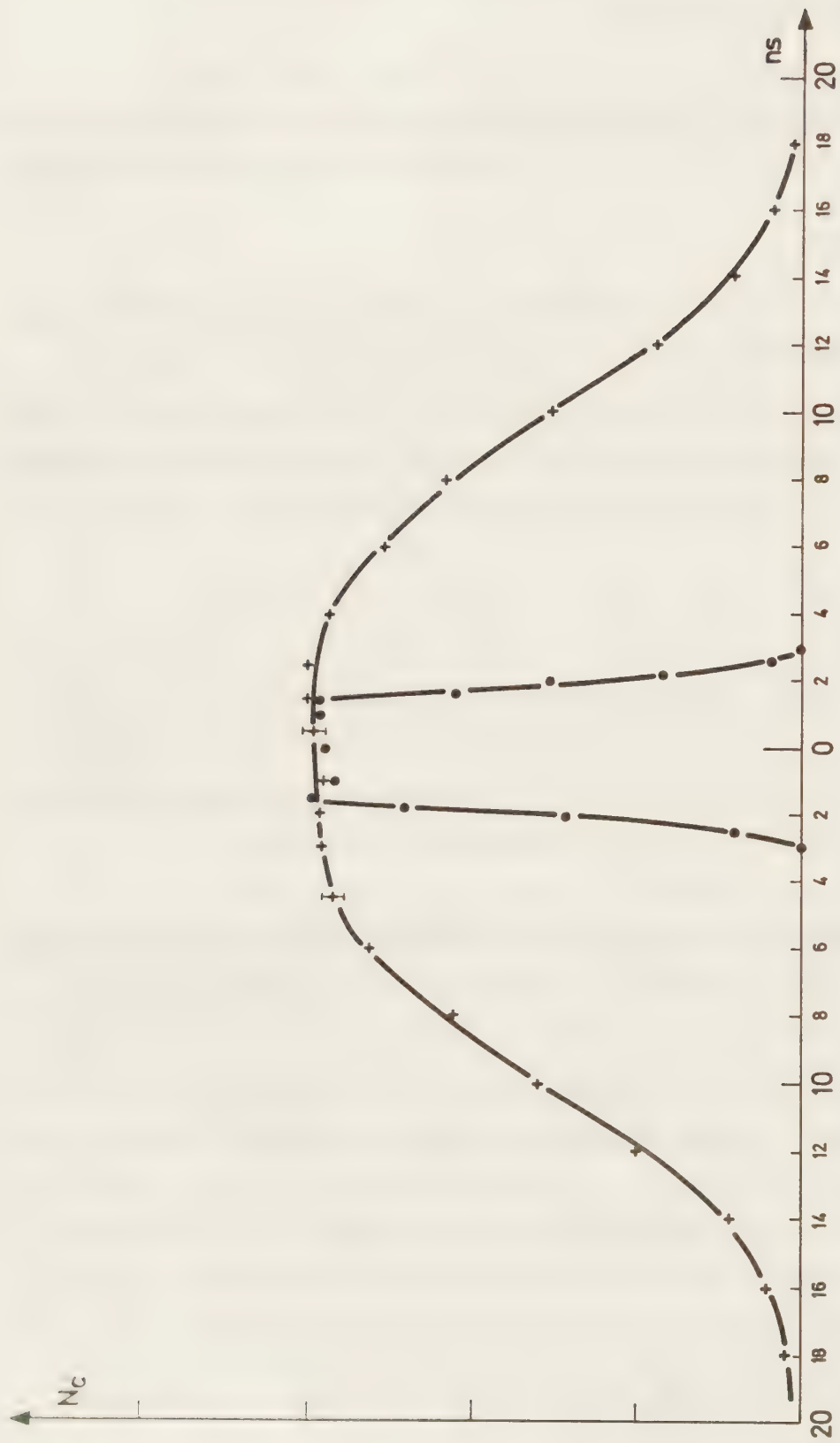


Fig. 16 - Résultats expérimentaux : la courbe la plus large est la courbe de coïncidence des voies lentes.
La courbe étroite est la courbe de coïncidence des voies lentes et rapides : la résolution obtenue est de 4 ns à mi-hauteur

VI - Vérification du dispositif expérimental

Afin de vérifier le bon fonctionnement de l'ensemble de notre appareillage, nous avons mesuré la corrélation angulaire des gammas résultant de l'annihilation du positon dans l'aluminium et avons comparé ces résultats à ceux publiés par BERKO et al. / 18 /. Comme le montre la figure 17, l'accord obtenu avec une résolution identique (0,55 mrad) est excellent.

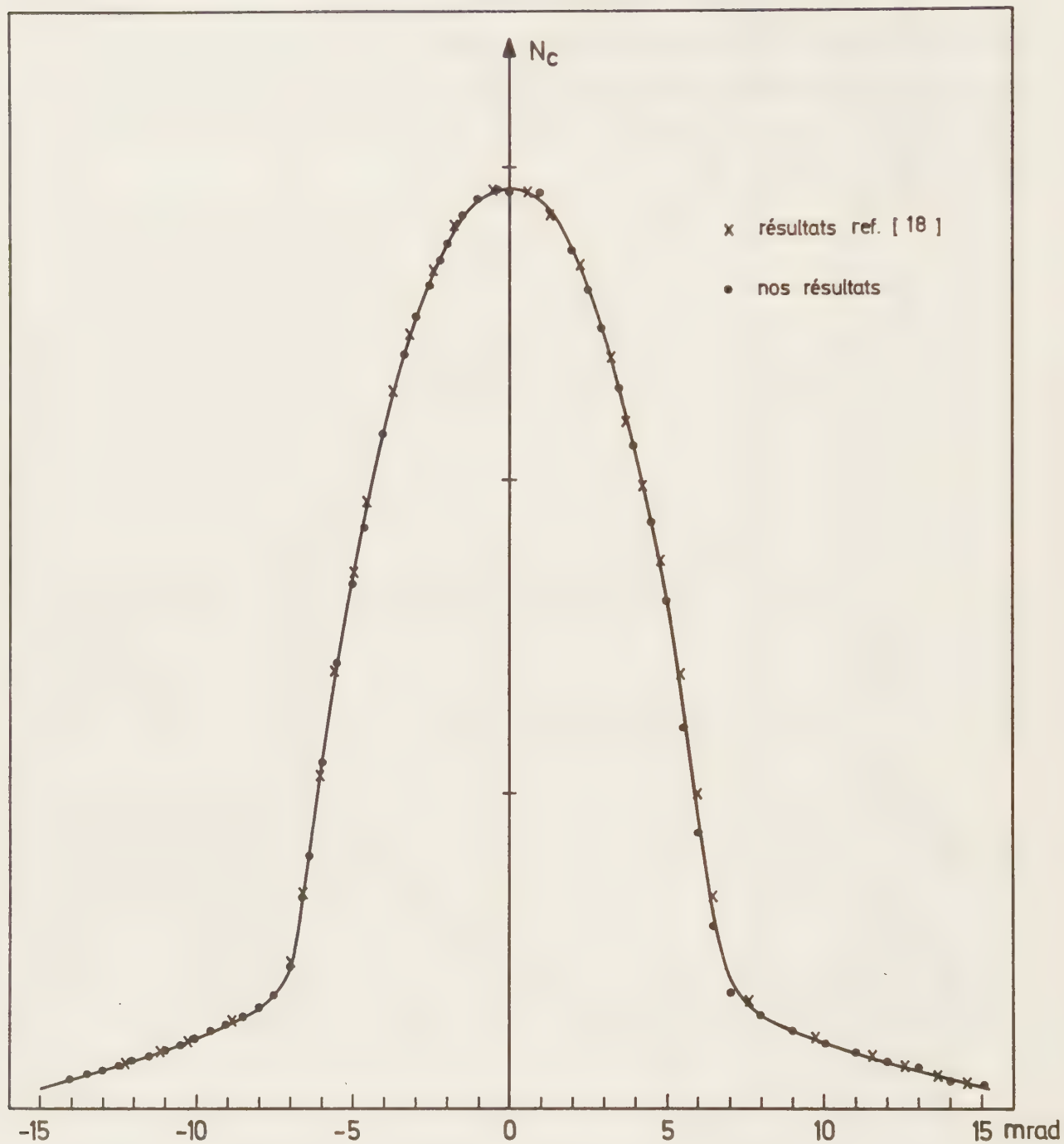


Fig. 17 - Vérification du dispositif expérimental : Distribution angulaire des γ d'annihilation du positon dans un échantillon d'aluminium

TROISIEME PARTIE : Résultats expérimentaux

I - Mise en évidence d'une composante étroite sur les courbes de corrélation angulaire des cristaux de quartz naturel.

II - Existence d'une structure fine dans certains quartz

III - Confirmation expérimentale que ces deux effets caractérisent l'annihilation du positon dans le quartz

III.1 - Traitement de surface

III.2 - Diffraction des rayons gammas

IV - Observation de particularités analogues pour des cristaux de fluorure de magnésium ($F_2 Mg$).

V - Observation de singularités sur les courbes de corrélation angulaire de MgO , $Ca F_2$, UO_2

VI - Cas des halogénures alcalins

CHAPITRE III

RESULTATS EXPERIMENTAUX

Les courbes de corrélation angulaire des gammas créés par l'annihilation du positon dans différents types de monocristaux isolants ont été enregistrées au moyen de fentes collimatrices de 1 mm, soit une résolution angulaire de 0,55 mrad.

Chaque courbe est obtenue pour une orientation bien définie du monocristal positionné de façon qu'une direction cristallographique soit perpendiculaire au plan de détection.

Le nombre de coups accumulés au maximum de la courbe au cours d'une mesure varie entre 6 000 et 10 000.

Pour chaque échantillon, les courbes correspondant aux différentes directions cristallographiques sont normalisées en surface.

Ces mesures mettent en évidence, dans les courbes de corrélation angulaire, différents types de singularités.

I - Mise en évidence d'une composante étroite sur les courbes de corrélation angulaire des cristaux de quartz naturel

La distribution angulaire des gammas d'annihilation dans une lame de quartz naturel taillée perpendiculairement à l'axe $[001]$ normal au plan d'observation est montrée figure 18. Une composante étroite se superpose à la distribution large déjà observée par PAGE / 22 , 23 / et COLOMBINO et al / 26 /. L'intensité de cette composante, obtenue par soustraction de la distribution large extrapolée, est de l'ordre de 1 à 2 % du nombre total d'annihilations détectées suivant les échantillons. Sa présence et son intensité sont indépendantes de la direction cristallographique de la lame.

La largeur à mi-hauteur de la composante étroite indique que la paire positon-électron qui s'annihile a une énergie voisine de 0,1 eV.

Dans des échantillons de quartz synthétique, l'intensité de la composante étroite est plus importante. Elle peut atteindre près de 10 % pour certains échantillons. Comme le montre la figure 19, outre la présence du pic étroit, il apparaît que, dans le quartz synthétique, la courbe correspondant à la distribution large est nettement déformée. Ces déformations sont disposées symétriquement sur les flancs de la courbe large observée pour le quartz naturel qui est indiqué en pointillé sur la figure.

II - Existence d'une structure fine dans certains quartz - Relation avec le réseau réciproque

Ces modulations, observées plus particulièrement dans des échantillons de quartz synthétique, sont situées à des valeurs angulaires variables suivant la direction cristallographique étudiée. Les variations observées pour un quartz synthétique orienté, tout à tour suivant les trois directions cristallographiques X $[1\ 0\ 0]$, Y $[1\ 2\ 0]$, Z $[0\ 0\ 1]$ sont montrées figure 19.

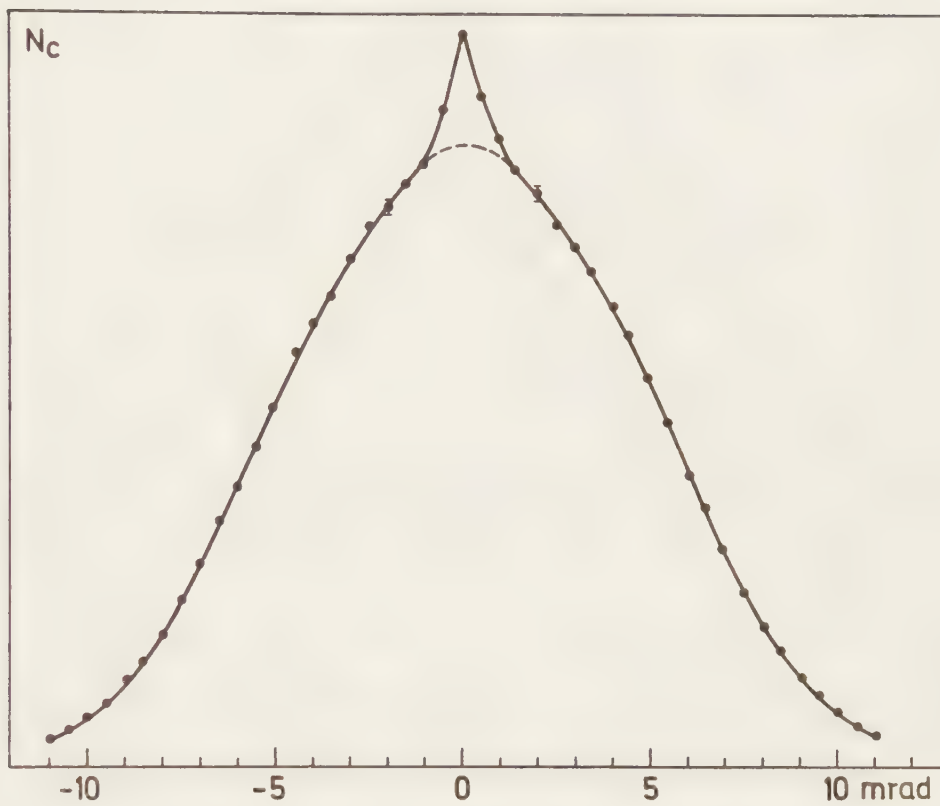


Fig.18 _ Corrélation angulaire des rayons gamma
d'annihilation dans le quartz naturel

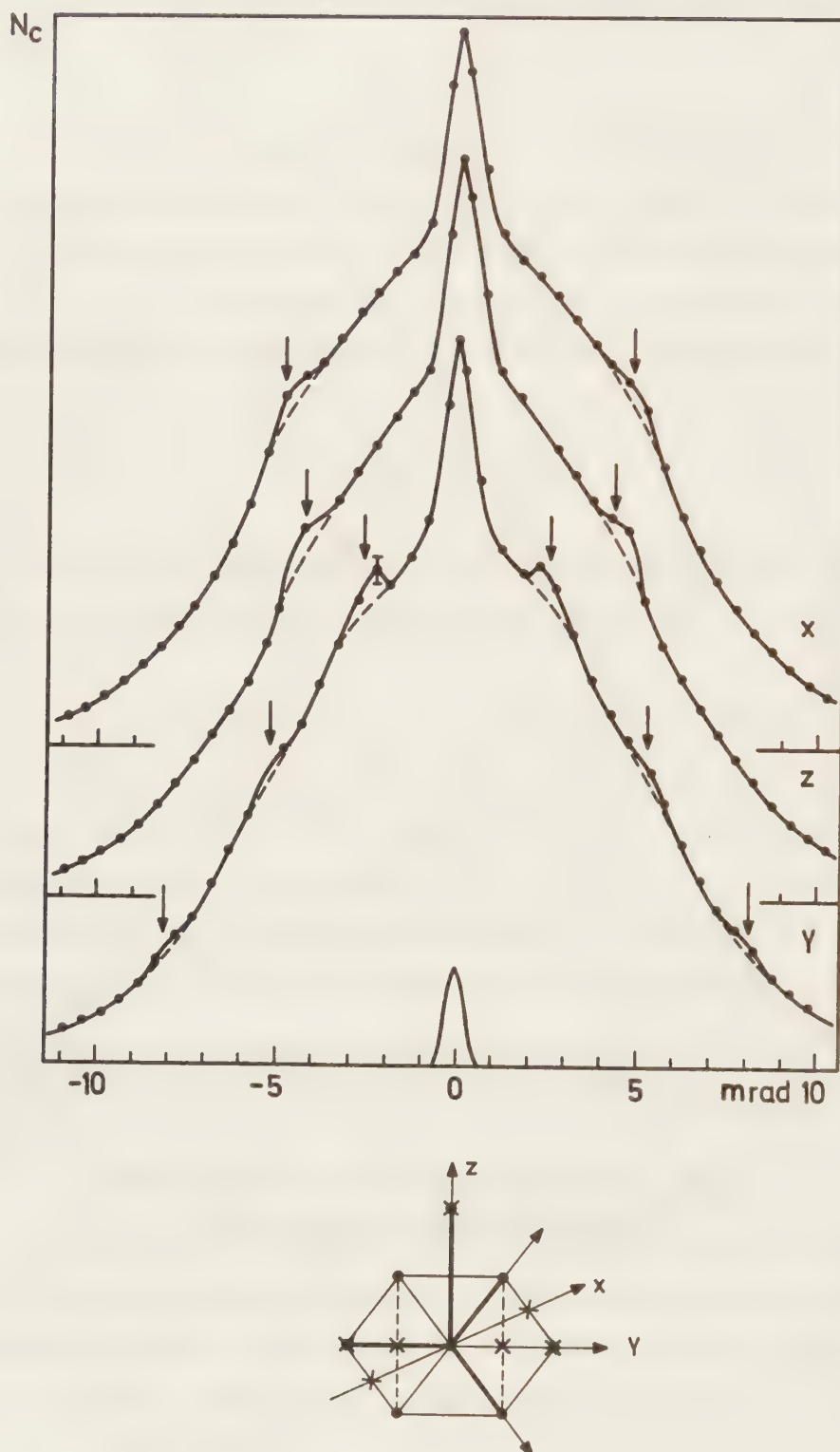


Fig. 19 - Courbes de corrélation angulaire d'un monocrystal de quartz synthétique orienté suivant les directions cristallographiques x , y et z

Les flèches correspondent aux croix portées sur la maille du réseau réciproque dessiné au bas de la figure

Les positions de ces modulations exprimées en impulsions des électrons sont trouvées égales, suivant la direction X à $P_X = \pm \frac{2\pi}{a}$, suivant la direction Y à $P_Y = \pm \frac{2\pi}{\sqrt{3}a}$ à $2P_Y$ et à $3P_Y$, suivant la direction Z à $P_Z = \pm \frac{2\pi}{c}$, où a et c représentent les paramètres de la maille hexagonale du quartz : $a = 4,19 \text{ \AA}$ et $c = 5,40 \text{ \AA}$.

Considérons les vecteurs de base du réseau réciproque :

$$\begin{aligned} \vec{a}_1 \cdot \vec{G}_1 &= 2\pi & |\vec{G}_1| &= \frac{4\pi}{a\sqrt{3}} \\ \vec{a}_2 \cdot \vec{G}_2 &= 2\pi & |\vec{G}_2| &= \frac{4\pi}{a\sqrt{3}} \\ \vec{c} \cdot \vec{G}_3 &= 2\pi & |\vec{G}_3| &= \frac{2\pi}{c} \end{aligned} \quad (19)$$

où $\vec{a}_1$, $\vec{a}_2$ et $\vec{c}$ sont les vecteurs de base du réseau direct suivant les directions $[100]$, $[010]$ et $[001]$ représentées sur la figure 19 bis.

Dans le plan normal à l'axe Z, ces vecteurs forment une maille hexagonale. Nous remarquons que suivant la direction X, Y, Z, les modulations sur les courbes de corrélation apparaissent aux extrémités des vecteurs réciproques ou à leur projection sur la direction étudiée.

Ainsi, suivant la direction X qui n'est pas colinéaire à un vecteur de base, du réseau réciproque, la modulation à $\frac{2\pi}{a}$ correspond à la projection des vecteurs de base réciproques sur la direction étudiée X.

Suivant la direction Y, la modulation de premier ordre $\frac{\pi}{a\sqrt{3}}$ correspond à la projection des vecteurs de base réciproques. La modulation du deuxième ordre à $\frac{2\pi}{a\sqrt{3}}$ correspond à l'extrémité du vecteur réciproque suivant Y. La modulation du troisième ordre correspond à la modulation du premier ordre translatée du module du vecteur réciproque :

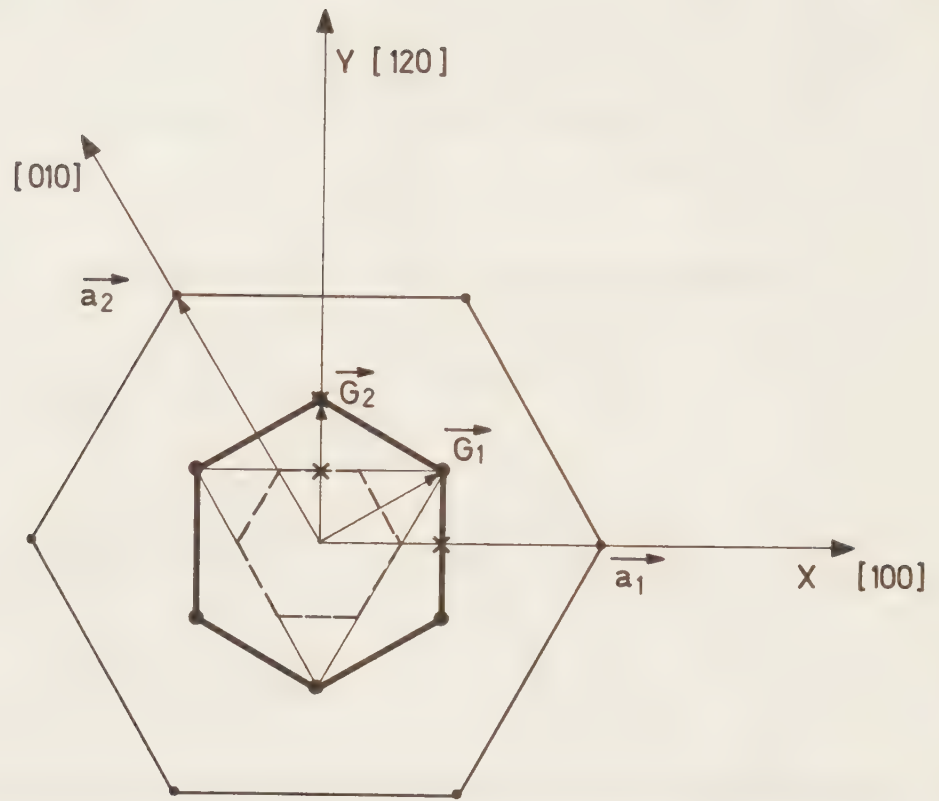


Fig. 19 bis - Mailles du réseau hexagonal simple et du réseau réciproque correspondant dessiné en trait fort - la zone de Brillouin est dessinée en pointillés - les croix correspondent aux modulations suivant la direction d'observation X ou Y .

$$\frac{\pi}{a\sqrt{3}} + \frac{2\pi}{a\sqrt{3}}$$

Suivant la direction Z , le vecteur de base réciproque est normal aux vecteurs de base de la maille réciproque hexagonale et seul celui-ci contribue à l'apparition de modulations suivant cette direction, ce qui est effectivement observé, la modulation étant située à $\frac{2\pi}{c}$.

L'existence d'une modulation suivant la direction X à $\frac{2\pi}{a}$ ne permet pas de corrélérer cette valeur à un effet de limite de la zone de Brillouin qui est égale à $\frac{4\pi}{3a}$ dans cette direction.

Il faut noter que la structure fine n'apparaît que dans certains cristaux de quartz où les variations d'intensité dans ce matériau sont particulièrement marquées, suivant l'échantillon considéré. Elles sont illustrées par les courbes de corrélation angulaires mesurées pour trois types de quartz orientés suivant la même direction cristallographique Y , représentée figure 20.

Le type a , un quartz naturel du Brésil, ne montre aucune modulation caractéristique d'une structure fine. Le type b , quartz naturel de Madagascar, montre une modulation d'ordre 1 . Enfin, le type c , quartz synthétique, met en évidence des modulations d'ordre 1 et 2.

Nous avons cherché à déterminer expérimentalement dans quelle mesure ces phénomènes observés en corrélation angulaire reflétaient réellement l'annihilation du positon dans le quartz.

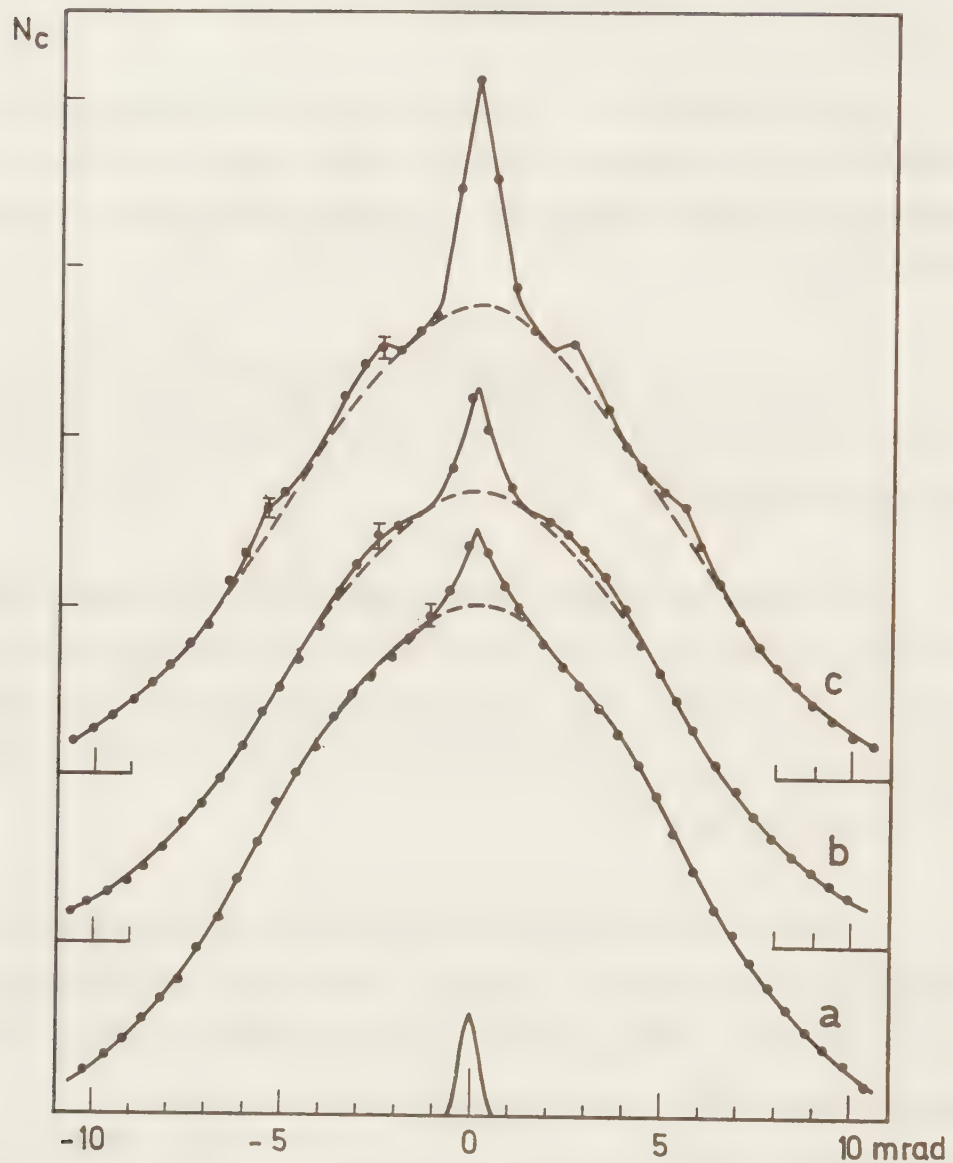


Fig.20 - Courbes de corrélation angulaire pour 3 types de quartz étudiés suivant l'axe Y

- a - Quartz naturel du Brésil
- b - Quartz naturel de Madagascar
- c - Quartz synthétique

La résolution expérimentale est indiquée au bas de la figure

III - Confirmation expérimentale que ces deux effets caractérisent l'annihilation du positon dans le quartz

III.1 - Etat de surface

Nous avons cherché à mettre en évidence si l'intensité mesurée de la composante étroite dépendait de l'état de surface de l'échantillon. Pour modifier cet état de surface, nous avons fait subir à cet échantillon différents traitement mécaniques et chimiques. Les résultats de cette étude sont résumés dans le tableau suivant :

Traitement	Intensité de la composante étroite (%)
Poli optique	$5 \pm 0,2 \%$
Surface doucie	$4,8 \pm 0,2 \%$
Trempe dans HF	$4,9 \pm 0,2 \%$
Surface recouverte de $0,4 \mu$ d'Al	$4,9 \pm 0,2 \%$

L'analyse de ces résultats ne montre aucune variation significative de l'intensité mesurée quand l'état de surface est fortement modifié, prouvant ainsi que le phénomène observé reflète bien un processus d'annihilation se produisant au sein même du cristal de quartz.

L'intensité des modulations n'est pas non plus affectée par les variations de l'état de surface.

Ce dernier résultat était à priori prévisible puisque les modulations semblent corrélées à la structure électronique du réseau cristallin.

III.2 - Diffraction des rayons gamma

Les modulations observées pouvant résulter de la diffraction des rayons gamma monochromatiques de 0,511 MeV à l'origine de la composante étroite, nous avons cherché à évaluer expérimentalement l'influence de la diffraction dans l'intensité des modulations d'un quartz synthétique. Nous avons étudié la transmission de gammas monochromatiques résultant de l'annihilation du parapositonium dans une poudre de MgO amorphe / 30 / à travers le même cristal de quartz (figure 21). Si ces rayons gammas monochromatiques sont diffractés de manière significative dans le quartz, des modulations doivent apparaître sur la courbe de corrélation angulaire de MgO .

L'absence de modulations sur la courbe de corrélation angulaire ainsi mesurée, montre que la diffraction gamma est négligeable dans les modulations observées pour le quartz.

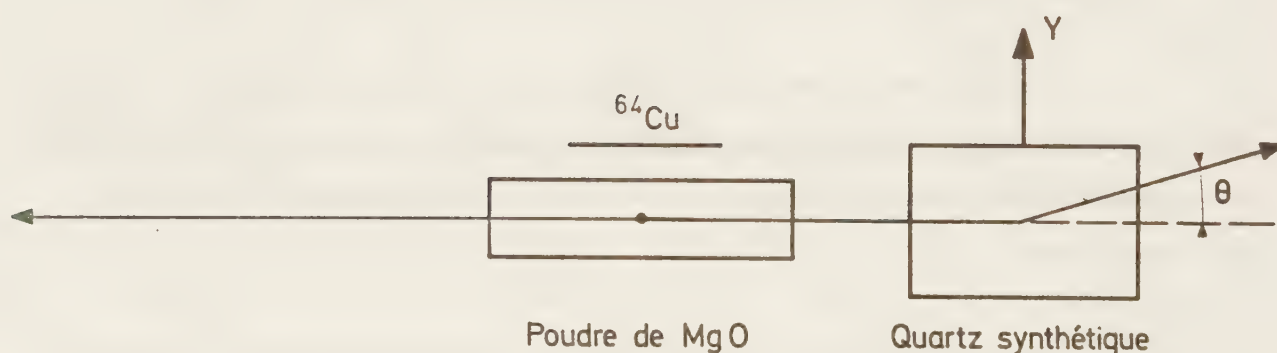


Fig. 21 - Dispositif expérimental pour l'étude de la diffraction des rayons gamma dans un quartz synthétique

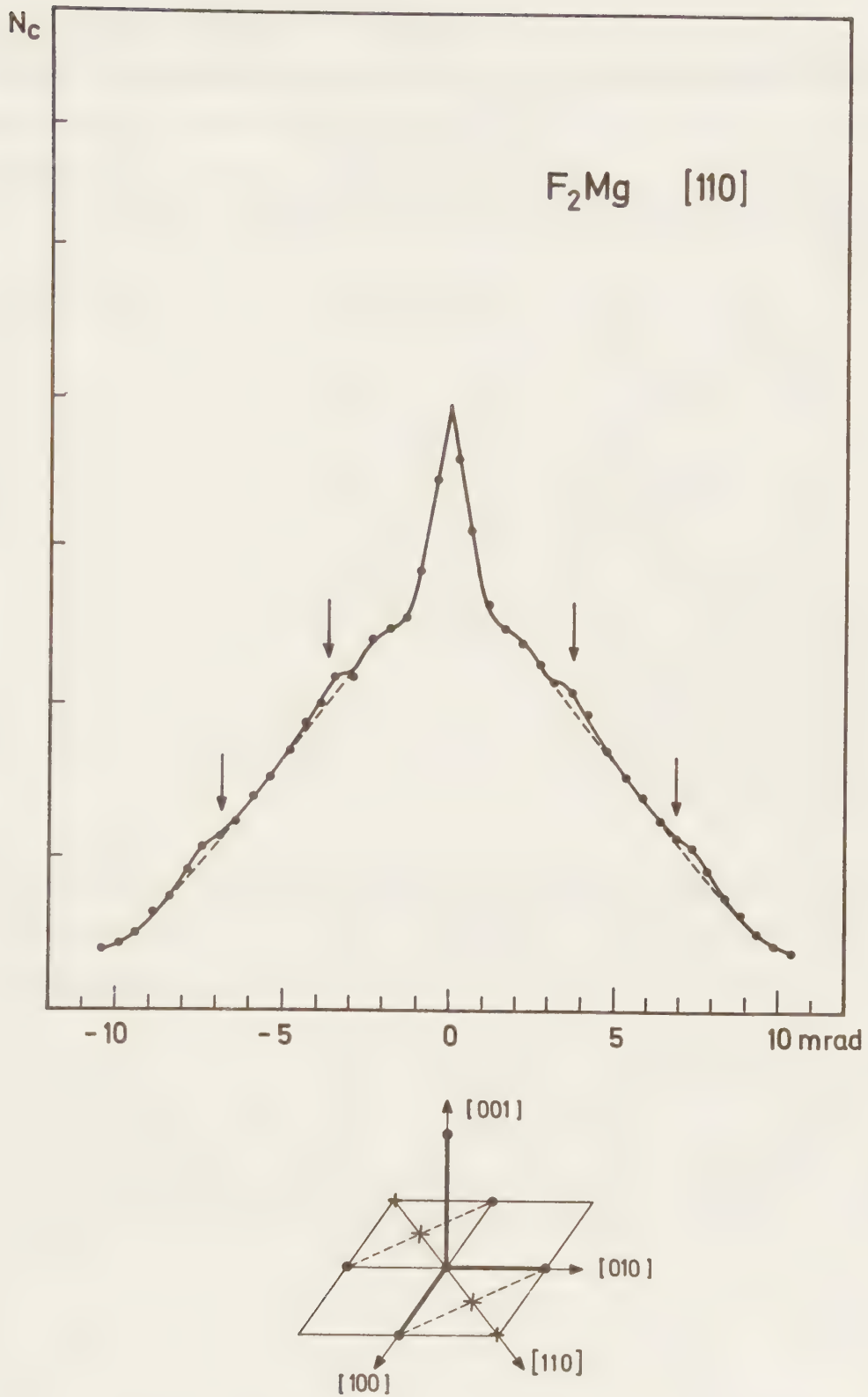


Fig. 22 - Courbe de corrélation angulaire d'un cristal de $F_2 Mg$ orienté suivant la direction $[110]$

Les flèches correspondent aux croix portées sur la maille du réseau réciproque dessiné au bas de la figure

IV - Observation de particularités analogues pour des cristaux de fluorure de magnésium F_2Mg ⁽⁺⁾

Nous avons pu observer sur les courbes de corrélation de cristaux de fluorure de magnésium synthétiques des particularités analogues à celles du quartz synthétique. La figure 22 montre l'existence d'un pic étroit et de modulations, caractéristiques de la direction étudiée $[110]$, située à $P_{110} = \frac{\pi\sqrt{2}}{a}$ et à $2P_{110}$ où $a = 4,62 \text{ \AA}$ représentant le paramètre de la base de la maille tétragonale de F_2Mg .

Soit $c = 3,05 \text{ \AA}$ le deuxième paramètre de la maille de ce cristal, les vecteurs de base du réseau réciproque sont

$$\begin{aligned}\vec{G}_1 &= \frac{2\pi}{a} \vec{e}_1 \\ \vec{G}_2 &= \frac{2\pi}{a} \vec{e}_2 \\ \vec{G}_3 &= \frac{2\pi}{c} \vec{e}_3\end{aligned}\tag{20}$$

où $\vec{e}_1$, $\vec{e}_2$ et $\vec{e}_3$ sont les vecteurs unitaires suivant les axes $[100]$, $[010]$ et $[001]$ définis sur la figure 22.

La maille réciproque normale à la direction $[001]$ est un carré de cote $\frac{1}{a}$. Nous remarquons que les modulations suivant $[110]$ apparaissent à la projection des vecteurs de base réciproques sur cette direction et à des multiples entiers.

(+) Un phénomène identique a été trouvé dans le fluorure de manganèse F_2Mn après la frappe de ce travail. Un pic étroit et une modulation caractéristique de la direction $[001]$ sont mis en évidence, confirmant la généralité de ce phénomène.

Le tableau suivant résume les résultats expérimentaux :

Monocristal	Direction cristallographique	Valeurs expérim. de la position de la structure fine en mrad (à $\pm 0,2$ mrad)	Valeurs remarquées dans l'espace réciproque	
			P	$\frac{P}{mc}$ (mrad)
Si O ₂ hexagonale a = 4,91 Å c = 5,40 Å	X ou [100]	$\pm 4,9$	$\frac{2\pi}{a}$	4,9
	Y ou [120]	$\pm 2,7$	$\frac{2\pi}{\sqrt{3}} \frac{1}{a}$	2,7
		$\pm 5,5$	$2 \times \frac{2\pi}{\sqrt{3}} \frac{1}{a}$	5,4
		$\pm 8,3$	$3 \times \frac{2\pi}{\sqrt{3}} \frac{1}{a}$	8,1
	Z ou [001]	$\pm 4,4$	$1 \times \frac{2\pi}{c}$	4,4
		$\pm 8,8$	$2 \times \frac{2\pi}{c}$	8,8
		$\pm 3,5$	$\frac{\pi\sqrt{2}}{a}$	3,55
F ₂ Mg tétragonal a = 4,62 Å c = 3,05 Å	[110]	± 7	$\frac{2\pi\sqrt{2}}{a}$	7,1

V - Observations de singularités sur les courbes de corrélation angulaire de certains autres cristaux isolants

Le second type d'isolant choisi pour commencer cette étude fut MgO qui présente un spectre en temps de vie simple. Nous avons pu mettre en évidence, sur les courbes de corrélation angulaire relatives à un cristal de MgO , des singularités situées à des valeurs remarquables du réseau réciproque, sans qu'apparaisse de composante étroite.

1 - Oxyde de magnésium

La corrélation angulaire des gammas d'annihilation mesurée suivant les trois directions $[111]$, $[100]$ et $[110]$ dans un monocristal d'oxyde de magnésium de structure c.f.c. est représentée sur la figure 23.

Les modulations du premier ordre observées dans ces trois directions correspondent à la limite de la première zone de Brillouin dans l'espace réciproque, représentée au centre de la figure.

L'existence d'une modulation suivant $[110]$ à $\frac{3\pi}{\sqrt{2}a}$ permet de corréler cette valeur à un effet de limite de zone et non à la projection des vecteurs réciproques sur l'axe $[110]$ dont la valeur est $\frac{\pi\sqrt{2}}{a}$.

Ce cristal nous a été fourni par le Dr. BELL⁽⁺⁾. C'est un cristal élaboré aux Etats-Unis par Semi-Element Inc. Dans un cristal de la même provenance, KRENIER et al. / 31 / ont montré par des expériences de channeling que le clivage de l'échantillon produisait une perturbation de l'état de surface. Pour estimer la profondeur de cette perturbation, nous avons comparé les courbes de corrélation angulaire obtenues avec une surface clivée, puis avec une surface décapée⁽⁺⁺⁾. La différence non significative des

(+) Université de Munich.

(++) Le cristal est trempé 15 mn dans une solution comprenant en poids : 1 partie SO_4H_2 , 1 partie H_2O , 5 parties NH_4Cl .

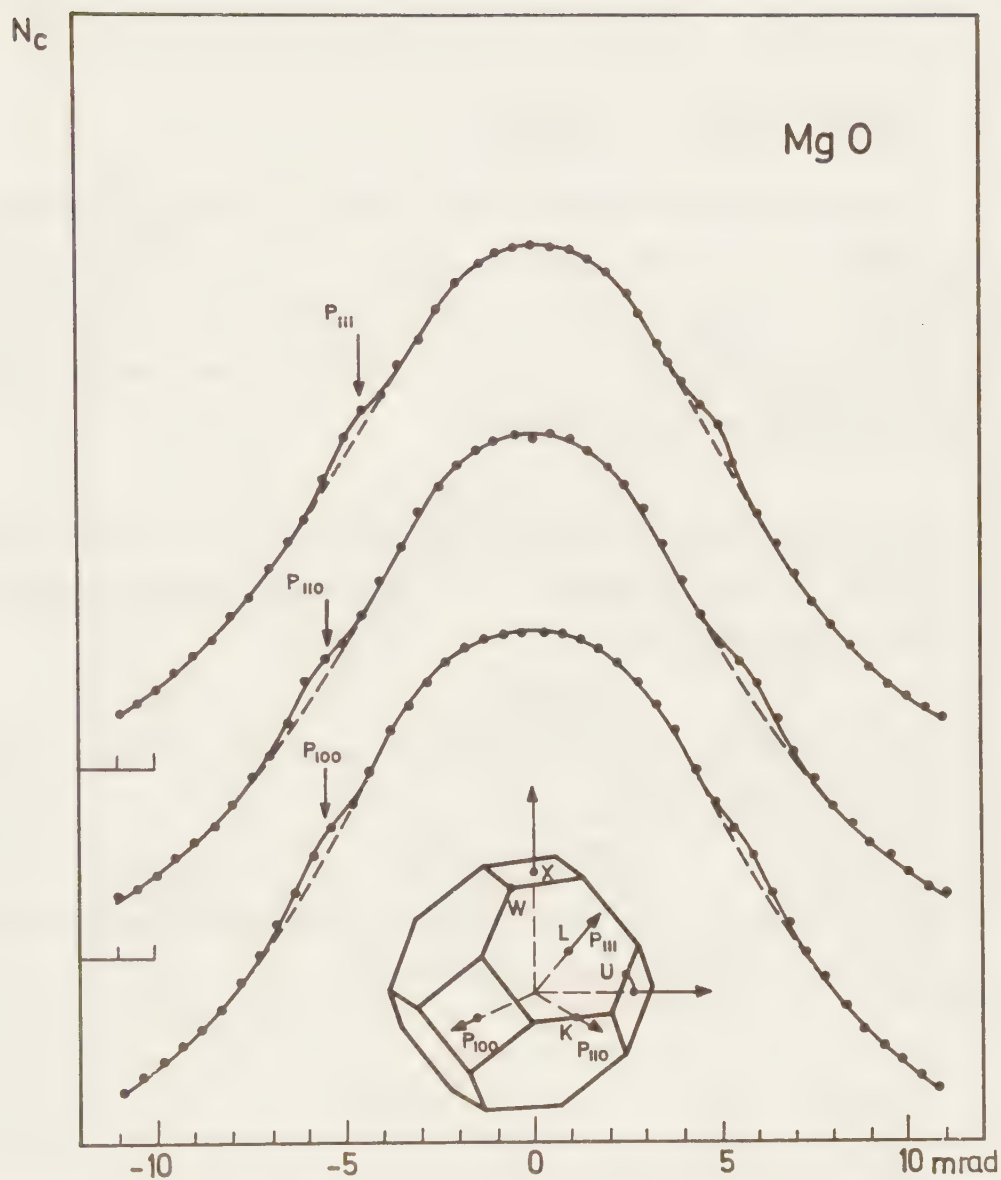


Fig. 23 - Courbes de corrélation angulaire d'un monocristal de MgO orienté suivant trois directions cristallographiques. Les flèches indiquent les limites de la première zone de Brillouin dessinée au milieu de la figure

courbes montre que la zone perturbée en surface par clivage est très petite par rapport à la pénétration du positon dans l'échantillon (quelques dixièmes de millimètre). Ce type de singularité n'est pas spécifique au cristal de MgO et peut être trouvé sur d'autres cristaux isolants.

2 - Fluorure de calcium et oxyde d'uranium

Les courbes de corrélation angulaires observées suivant la direction $[111]$ dans un monocristal de fluorure de calcium et suivant la direction $[111]$ dans un cristal d'oxyde d'uranium sont représentées sur les figures 24 et 25. Les modulations qui apparaissent sur ces courbes correspondent encore aux limites de la première zone de Brillouin dans les directions cristallographiques étudiées.

Les cristaux synthétiques de fluorine proviennent de la SOREM à Pau. La face étudiée est soit clivée, soit décapée⁽⁺⁾. Ce type de singularité est plus ou moins bien résolu suivant l'échantillon étudié.

Le cristal d'oxyde d'uranium a été élaboré au Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble. La face $[111]$ est clivée.

Les résultats concernant la structure fine sont résumés dans le tableau suivant :

(+) Le cristal est trempé 1 mn dans $SO_4 H_2$ concentré à $55^\circ C$.

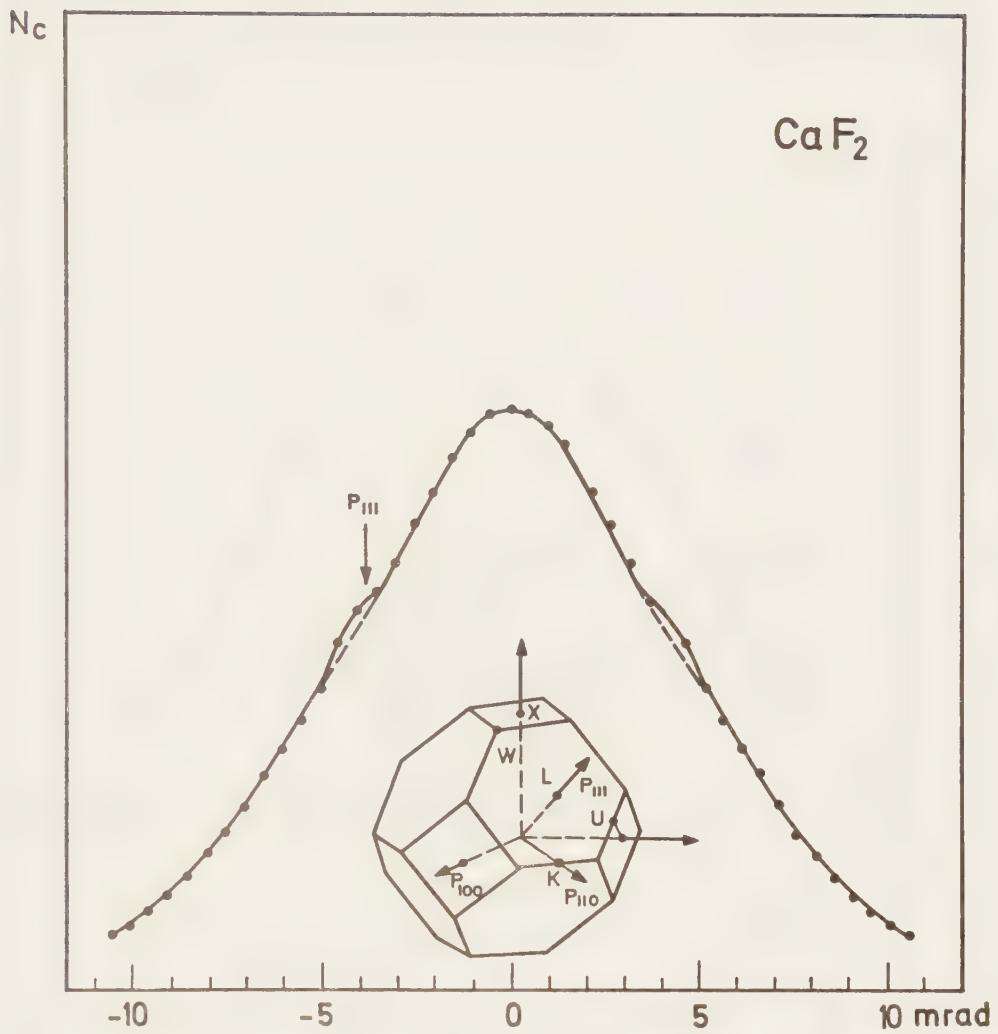


Fig. 24 - Courbes de corrélation angulaire d'un monocristal de CaF_2 orienté suivant la direction cristallographique $[111]$ Les flèches indiquent les limites de la première zone de Brillouin dessinée au milieu de la figure

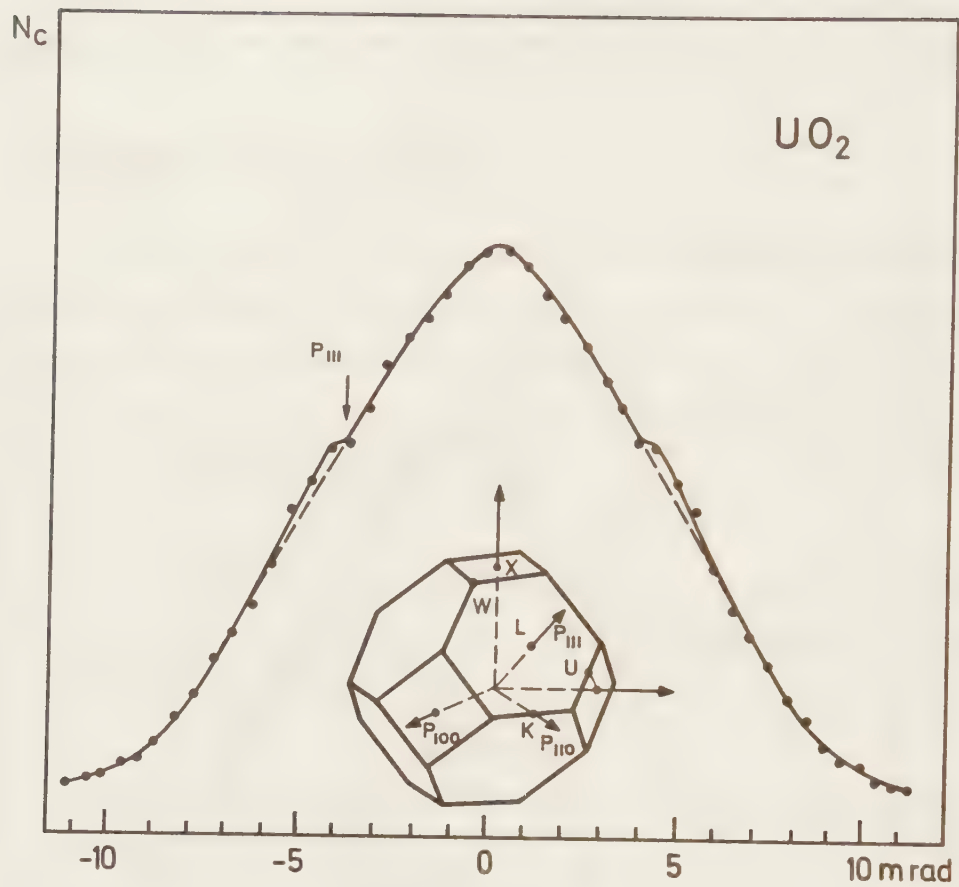


Fig. 25 - Courbe de corrélation angulaire d'un monocristal de UO_2 orienté suivant la direction $[III]$
La flèche indique la limite de la première zone de Brillouin dessinée au milieu de la figure

Monocristal	Direction cristallographique	Valeurs expérim. de la position de structure fine en mrad (à $\pm 0,2$ mrad)	Valeurs remarquées dans l'espace réciproque	
			P	$\frac{P}{mc}$ (mrad)
Mg O c.f.c. $a = 4,2 \text{ \AA}$ Figure 23	[1 0 0]	$\pm 5,5$	$\frac{2 \pi}{a}$	5,6
	[1 1 0]	$\pm 5,8$	$\frac{3 \pi}{\sqrt{2}a}$	5,7
	[1 1 1]	$\pm 4,8$	$\frac{\pi \sqrt{3}}{a}$	4,7
Ca F ₂ cubique $a = 5,46 \text{ \AA}$ Figure 24	[1 1 1]	$\pm 3,9$	$\frac{\pi \sqrt{3}}{a}$	3,7
UO ₂ cubique $a = 5,46 \text{ \AA}$ Figure 25	[1 1 1]	$\pm 3,9$	$\frac{\pi \sqrt{3}}{a}$	3,7

VI - Cas des halogénures alcalins

Bien que le spectre en temps de vie des halogénures alcalins soit complexe, indiquant plusieurs processus d'annihilation, nous avons cherché si de telles singularités pouvaient être résolues sur les courbes de corrélation angulaires des halogénures alcalins.

Notre étude a été faite sur des monocristaux de NaCl, KCl, KBr, LiF, d'origines diverses (Harswaw, Quartz et Silice).

L'absence de singularités sur les courbes obtenues à partir de nos échantillons n'apporte pas toutefois la preuve qu'il ne soit pas impossible d'observer de telles singularités dans des cristaux d'halogénures alcalins.

Nous avons alors choisi d'étudier d'une façon systématique les singularités obtenues dans SiO_2 et F_2Mg . Nous avons cherché à confirmer que l'existence de la structure fine est liée à la présence de la composante étroite, pourquoi l'intensité de ces singularités varie très fortement d'un échantillon à l'autre et enfin quel pouvait être le processus d'annihilation à l'origine de ces singularités.

Remarquons que ce type de singularités suggère au moins l'existence de deux processus distincts d'annihilation du positon qui n'est pas révélée par l'étude du temps de vie de l'annihilation du positon dans SiO_2 et F_2Mg .

QUATRIEME PARTIE : Etude des échantillons de quartz

I - Etude des caractéristiques des échantillons de quartz présentant des singularités d'intensités différentes

I.1 - Mesure de densité

I.2 - Diffusion des rayons X aux petits angles

I.3 - Utilisation de la méthode de Lang

I.4 - Analyse des impuretés

II - Conclusions

CHAPITRE IV

ETUDE DES ECHANTILLONS DE QUARTZ

Pour plusieurs échantillons de quartz présentant des intensités différentes de la composante étroite et de la structure fine, nous avons cherché à mettre en évidence par différentes méthodes les paramètres physiques (impuretés, vacances, etc...) susceptibles de les distinguer ; ceci dans le but d'établir éventuellement une relation entre les variations de l'intensité des singularités et l'un de ces paramètres caractéristiques.

Nous nous sommes tout d'abord attachés à étudier expérimentalement la possibilité d'une variation importante de concentration de lacunes entre les différents échantillons (quelques %).

En effet en admettant que la répartition de lacunes dans un cristal peut être écrite sous forme d'une loi de Poisson, la distribution angulaire des gammas d'annihilation est perturbée et présente des termes de résonance situés aux extrémités ou à la projection des vecteurs réciproques sur la direction étudiée / 31 bis /.

Nous avons choisi, les trois quartz dont les courbes de corrélation angulaire sont montrées figure 20, où les modulations sont plus ou moins importantes, en fonction du type considéré, pour les études suivantes :

- la mesure de densité
- la diffusion des rayons X aux petits angles
- l'analyse des impuretés

Pour évaluer l'intensité des modulations, nous extrapolons la courbe obtenue de part et d'autre de la modulation et nous mesurons la surface comprise entre cette courbe extrapolée et la courbe expérimentale. Cette méthode est appliquée à la modulation d'ordre 1.

L'intensité de la composante étroite est obtenue suivant la méthode décrite précédemment.

Nous obtenons les valeurs suivantes :

Cristal	Origine	I_m % modulation	I_p % pic étroit
Type A	Quartz naturel Brésil	0	$3,6 \pm 0,2$
Type B	Quartz naturel Madagascar	$0,3 \pm 0,1$	$4,9 \pm 0,2$
Type C	Quartz synthétique Sawyers	$0,4 \pm 0,1$	$7 \pm 0,2$

Il est à remarquer que l'intensité des modulations observées croît quand l'intensité de la composante étroite croît.

1.1 - Mesures de densité

Des mesures très précises de densité ont été entreprises dans le but de déterminer une éventuelle variation entre les concentrations de lacunes présentes dans les trois

échantillons. Ces expériences ont été faites au Laboratoire National d'Essais, par la méthode de flottaison, avec un mélange de bromure d'éthyle et de bromoforme. Les résultats de ces mesures, effectuées à une température de 19,75°C, sont rapportées dans le tableau ci-dessous :

Cristal	Densité g/cm ³
Type A	2,64893 $\pm$ 0,00005
Type B	2,64905 $\pm$ 0,00005
Type C	2,64903 $\pm$ 0,00005

Aucune variation significative de densité ne peut être décelée, par cette méthode, entre les trois échantillons. Seule la densité obtenue pour l'échantillon A est très légèrement inférieure à celle mesurée pour les deux autres échantillons.

Ces résultats s'avèrent donc inexploitable pour une estimation de l'ordre de grandeur des concentrations de lacunes dans les échantillons dont la densité est liée également aux concentrations différentes d'impuretés et à la position de ces impuretés dans le réseau. C'est pourquoi nous avons cherché à estimer cet ordre de grandeur par une méthode plus spécifique.

1.2 - Diffusion des rayons X aux petits angles

Pour compléter les expériences de densité, nous avons entrepris de mesurer la diffusion des rayons X aux petits angles créée par nos échantillons. Cette technique permet l'étude des défauts ponctuels. Pour des vacances, la concentration minimale, mesurable avec l'appareillage réalisé par A.M. LEVELUT, est de l'ordre de 10^{-3} / 32 /.

Pour cette mesure, les trois échantillons de quartz A , B et C ont été réduits en une lame mince, d'épaisseur 0,1 mm.

Les courbes de diffusion obtenues pour chaque type de quartz sont identiques et caractéristiques d'échantillons peu différents, ce qui permet de conclure que le nombre de vacances dans ces échantillons est inférieure à 10^{-3} .

1.3 - Utilisation de la méthode de Lang

Nous avons évalué, par la méthode de Lang / 33 / le nombre de dislocations des deux quartz présentant des courbes de corrélation angulaire très différentes (figure 26 a). Cette étude a été réalisée au Laboratoire de Cristallographie du Professeur AUTHIER ⁽⁺⁾. Les topographies par transmission aux Rayons X sont représentées sur la figure 26 b. Les plans réflecteurs dont la trace est verticale sont du type (0001). Ces clichés montrent des quartz d'excellente qualité et une différence dans le nombre de dislocations détectées par cette méthode peu significative.

1.4 - Analyse des impuretés

Cette analyse a été faite au Laboratoire de Chimie Analytique du Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses par analyse spectrographique. Les résultats sont présentés au tableau suivant :

(+) Nous remercions M. ZARCA qui s'est chargé de cette étude.



(b) Quartz synthétique
sans dislocation



Quartz naturel
3 dislocations apparentes

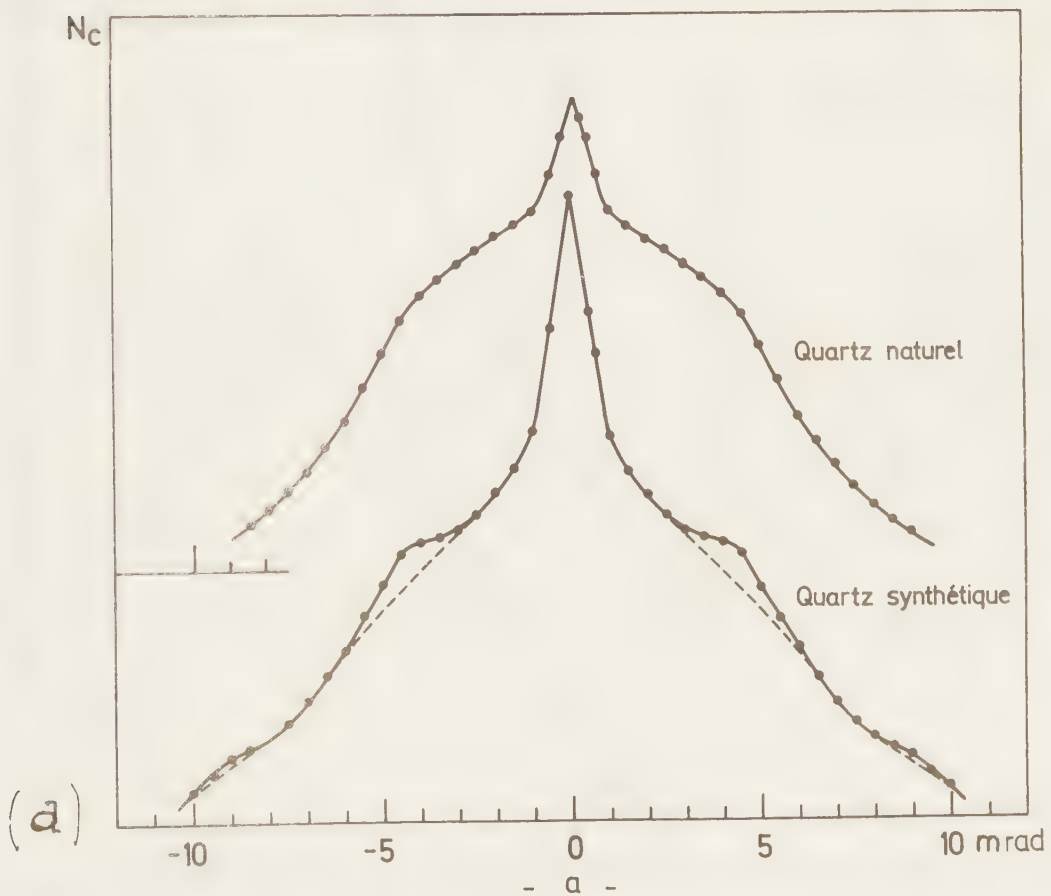


Fig.26 - Courbes de corrélation angulaire des quartz dont les dislocations ont été étudiées par la méthode de LANG . Les topographies par transmission aux rayons X sont représentées ci-dessus.

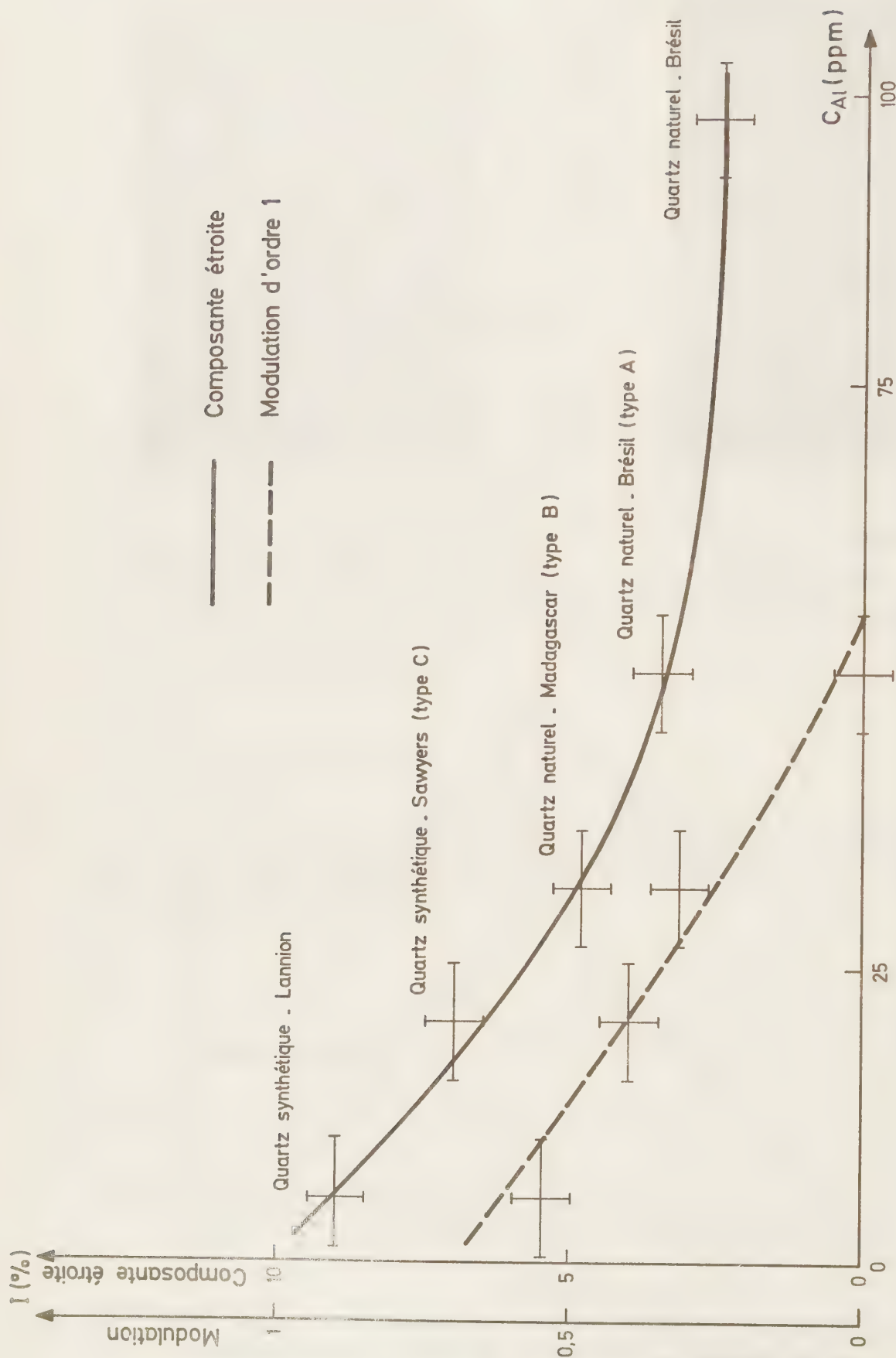


Fig. 27 - Variations de l'intensité de la composante étroite et de la modulation d'ordre 1 en fonction de la concentration en Al dans différents échantillons orientés suivant Y

Cristal	Al (ppm)	Na	Ce	Cu
Type A Quartz naturel du Brésil	50	10	2	10
Type B Quartz naturel de Madagascar	32	10	2	3
Type C Quartz synthétique (SAWYERS)	18	15	5,5	3
Quartz naturel Brésil	100	10	2	10
Quartz synthétique (LANNION)	2	10	2	3

Pour tous les échantillons B < 1 , Be , Cd , Co , Ni < 2 , Sn , Mn , Ti < 5 ,
Cu , Mo , V < 10 , Ca , Fe < 20.

Seule la concentration en aluminium varie fortement d'un échantillon à l'autre. Il est à remarquer que les intensités de la composante étroite et de la modulation d'ordre 1 semblent varier d'une manière cohérente, en fonction de la concentration de ce type d'impuretés. Ces variations sont représentées sur la figure 27. Ce résultats qui semble indiquer que la présence d'aluminium est susceptible d'influencer l'intensité relative des divers processus d'annihilation paraît raisonnable en raison du rôle important joué par cette impureté dans la formation de centres colorés, comme nous le verrons au Chapitre V.

II - Conclusions

Cette étude montre que nos échantillons d'origine synthétique ou naturels sont d'excellente qualité avec peu de dislocations et ayant une concentration de lacunes inférieure à 10^{-3} . Cette faible limite supérieure ne permet pas d'expliquer l'origine des singularités par une variation de concentration importante de lacunes entre les échantillons.

Seuls le nombre et l'importance des impuretés différencient nos échantillons et plus particulièrement l'aluminium dont la concentration varie dans des proportions importantes d'un échantillon à l'autre. Cette concentration semble influencer très fortement l'intensité de la composante étroite et par suite, le mécanisme de formation de ce type d'annihilation dans le cristal.

D'autre part, l'intensité de la composante étroite paraît conditionner l'apparition et l'intensité des modulations, suggérant une même origine pour ces deux types de singularités.

CINQUIEME PARTIE : Evolution des singularités sous l'action de divers agents physiques.

I - Traitement électrolytique des échantillons

II - Traitement thermique des échantillons de quartz de types différents

III - Influence de la température

III.1 - Sur la composante étroite

III.2 - Sur les modulations

IV - Influence des défauts créés

IV.1 - Par trempe

IV.2 - Par irradiation

V - Influence de la vitesse de croissance du cristal synthétique.

CHAPITRE V

EVOLUTION DES SINGULARITES SOUS L'ACTION DE DIVERS AGENTS PHYSIQUES

Après avoir étudié les paramètres physiques de plusieurs échantillons de quartz présentant des intensités différentes et montré que le processus à l'origine de la composante étroite est fortement influencé par la présence d'aluminium, nous allons chercher qu'elle est l'évolution de ce processus dans un échantillon sous l'influence de différents agents physiques.

I - Traitement électrolytique des échantillons

Le traitement électrolytique des échantillons de quartz synthétique permet d'éliminer les ions alcalins qui sont en général associé à des ions Al^{+} substitutionnel / 34 / ; quand ce traitement est effectué dans l'air, l'ion alcalin diffuse sous l'action du champ électrique appliqué et se trouve remplacé par un ion H^{+} qui vient compenser la charge négative de l'électron piégé sur l'aluminium. Etant donné le rôle important que semblent jouer les impuretés d'aluminium, il nous a paru intéressant d'étudier l'influence d'un tel traitement sur l'intensité des singularités observées.

Nous avons utilisé des échantillons de quartz spécialement fabriqués pour cette étude par la Compagnie SAWYER. Deux quartz synthétiques de même origine, l'un

brut, l'autre ayant subi le traitement électrolytique, ont été analysés. La comparaison des distributions angulaires obtenues fait apparaître une augmentation de la composante étroite dont l'intensité passe de $3 \pm 0,2 \%$ à $4 \pm 0,2 \%$ après traitement électrolytique. Ce résultat confirme donc que le processus d'annihilation à l'origine de la structure fine du quartz est très sensible à la présence d'impuretés métalliques dans le cristal, impuretés dont la présence tend à réduire la probabilité de ce processus d'annihilation.

II - Traitement thermique des échantillons de quartz de types différents

Dans le but d'améliorer la perfection de nos échantillons de types différents, nous avons effectué des recuits entre 200° et 500°C pendant plusieurs jours. Puis nous avons comparé les courbes de corrélation obtenues avant et après ces traitements.

Aucune modification sur l'allure des courbes n'est apparue.

Nous avons dépassé le point de transition de structure $\alpha \rightarrow \beta$ situé à 573°C pour atteindre des températures de l'ordre de $1\ 100^{\circ}\text{C}$. En refroidissant lentement les échantillons, surtout au voisinage du point de transition, nous retrouvons à 20°C les résultats obtenus pour les échantillons vierges.

Ces résultats montrent qu'un traitement thermique n'influence pas les caractéristiques de nos échantillons.

III - Influence de la température

Nous avons enregistré les courbes de corrélation angulaire d'un quartz synthétique de type C, orienté suivant $[1\ 2\ 0]$ à différentes températures. L'allure des courbes obtenues est montré figure 28. Lorsque la température augmente, deux phénomènes sont mis en évidence ; la largeur à mi-hauteur du pic étroit augmente et l'intensité des modulations décroît rapidement et devient nulle à partir d'une certaine valeur de la température.

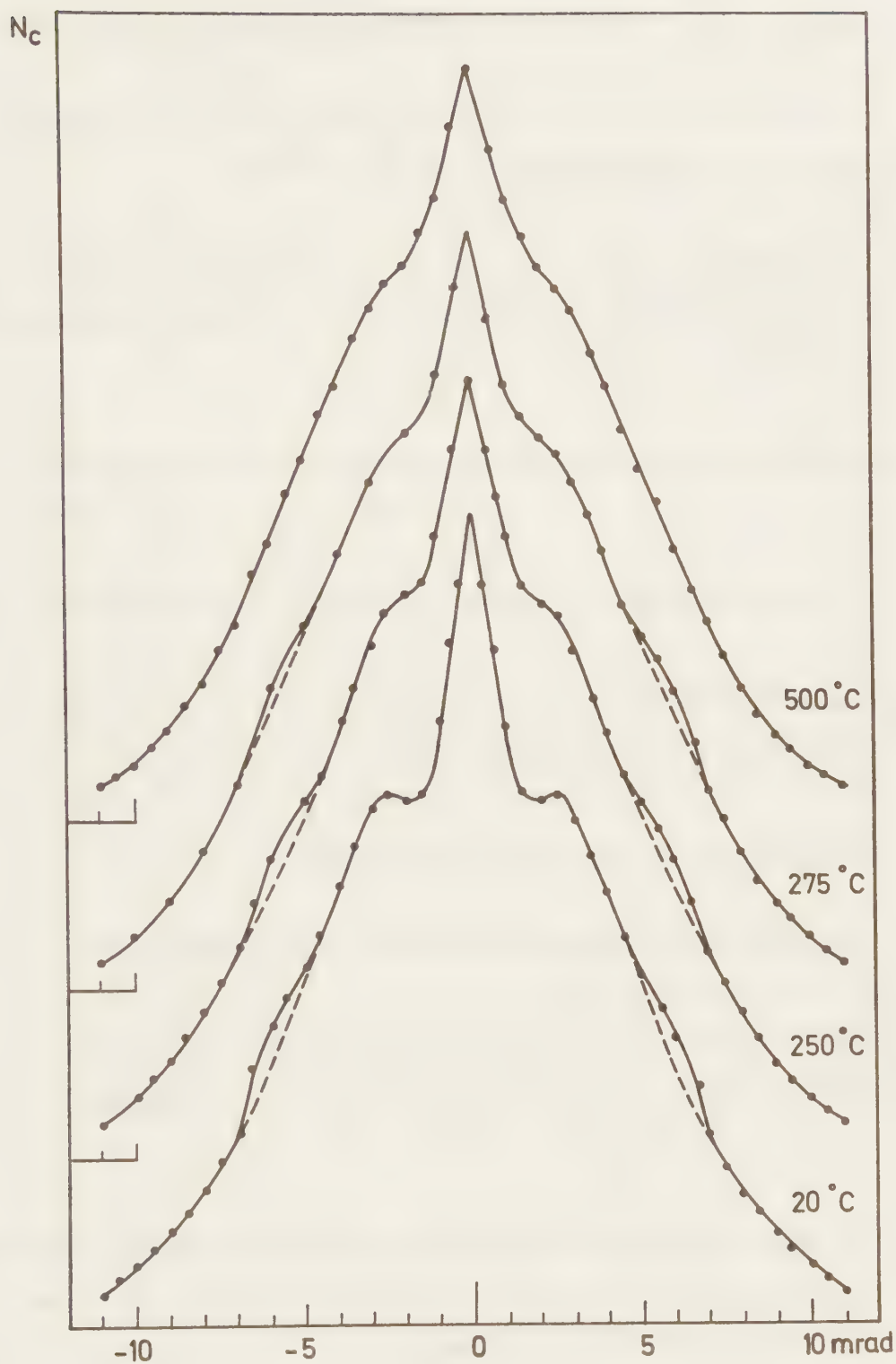


Fig. 28 - Influence de la température sur l'allure des courbes de corrélation angulaire des γ d'annihilation dans un cristal de SiO_2 orienté suivant l'axe Y

III.1 - Influence de la température sur la composante étroite

La mesure de la largeur à mi-hauteur de la composante étroite fournit l'impulsion maximum de la paire positon-électron qui s'annihile.

Une augmentation de température provoquera un élargissement de la largeur à mi-hauteur de cette composante qui reflètera la variation d'impulsion maximum de la paire électron-positon au moment de son annihilation.

L'amplitude de cet élargissement dépend étroitement du processus d'annihilation et peut être calculée à partir de l'énergie d'agitation thermique de la paire.

La comparaison entre les variations expérimentales et théoriques de l'élargissement en fonction de la température doit nous fournir des renseignements précieux concernant le processus d'annihilation qui est à l'origine de cette composante étroite, comme nous le verrons au Chapitre de l'interprétation des résultats.

III.2 - Influence de la température sur les modulations

Pour déterminer l'intensité des modulations, nous prolongeons la courbe de part et d'autre de la modulation et nous mesurons l'aire comprise entre cette courbe extrapolée et la courbe expérimentale. Cette méthode est appliquée à la modulation d'ordre 2, plus facile à extrapoler que celle d'ordre 1 qui est déformée par l'élargissement du pic étroit.

Lorsque la température de l'échantillon augmente, bien que la détermination des modulations soit difficile et peu précise, il est possible d'affirmer que l'intensité diminue d'une façon significative en fonction de la température pour ne plus pouvoir être mesurée expérimentalement de la composante large au-delà de 800°K.

IV - Influence des défauts

IV.1 - Influence des défauts créés par trempe

Dans le but de modifier la concentration des défauts à 20°C, nous avons effectué des trempes sur des cristaux de quartz de types différents. La différence de température est de 200°, soit $200^\circ \rightarrow 20^\circ$, soit de $500^\circ \rightarrow 300^\circ$, suivi d'un recuit jusqu'à 20°C.

Un plus grand écart de température entraîne un grand nombre de dislocations.

Les courbes de corrélation angulaires obtenues avant et après la trempe d'un échantillon sont identiques, quel que soit le type de l'échantillon étudié.

Toutefois, la température peu élevée de chauffage, inférieure au point de transition (573°) ne doit pas modifier d'une façon sensible la concentration de défauts, soit que l'énergie de formation d'atomes interstitiels soit grande, soit qu'il y ait recombinaison très rapide des défauts créés.

IV.2 - Influence des défauts créés par irradiation dans le quartz

Si de très nombreux résultats expérimentaux ont été publiés / 35 , 36 et les références citées dans ces articles/montrant l'influence de l'irradiation aux neutrons, aux électrons et aux rayons X sur les propriétés des cristaux de quartz, les interprétations de ces résultats concernant la nature et l'influence des défauts ainsi créés, demeurent encore très hypothétiques. Néanmoins, quelques conclusions peuvent être obtenues.

Pour une dose d'irradiation de neutrons rapides faible (inférieure à $3 \cdot 10^{19}$ neutrons/cm²), les défauts créés dans un cristal de quartz sont des défauts points et des petites régions désordonnées (10^3 , 10^4 atomes) / 37 /. On admet que les lacunes et la plupart des interstitiels formés résultent du déplacement d'ions oxygène car la formation

de vacances silicium qui exige la rupture de quatre liaisons Si-O demande une énergie beaucoup plus grande et apparaît comme beaucoup moins probable.

Pour des doses d'irradiation des neutrons rapides élevées (supérieure à 3.10^{19} neutrons/cm²) les perturbations du réseau deviennent appréciables et l'existence de larges régions désordonnées peuvent être mises en évidence par de nombreuses méthodes / 38 à 43 /. Toutefois, les doses d'irradiation de neutrons rapides que nous avons utilisées ($< 10^{17}$ neutrons/cm²) sont très nettement inférieures à 3.10^{19} neutrons/cm² de sorte que le réseau cristallin est vraisemblablement très peu perturbé par ce type d'irradiation qui ne doit pratiquement provoquer que l'apparition de défauts ponctuels.

Dans ce cas, l'existence de ces défauts ponctuels se traduit principalement par la formation de centres colorés dont les caractéristiques peuvent être étudiées par absorption optique.

Les bandes d'absorption créées par irradiation du quartz ont été étudiées avec soin par MITCHELL et PAIGE / 35 /. Ils identifient trois bandes d'absorption dénommées respectivement A (450-477 m μ), C (207-218 m μ) et E (163 m μ). Un spectre caractéristique d'absorption d'un quartz naturel irradié aux électrons est montré figure 29. Les bandes observées sont larges et l'intensité d'absorption dans les différentes bandes dépend de l'échantillon étudié.

Des spectres identiques sont obtenus pour des échantillons irradiés aux rayons X, aux gammas ou aux neutrons.

La bande A n'existe qu'en présence d'impuretés d'aluminium. Le centre A résulte du piégeage d'un trou par un ion Al⁻ substitué : $Al^{-} \rightarrow Al^{0} + e^{-}$, l'électron ainsi libéré étant capturé par l'ion alcalin associé qui peut alors diffuser.

Alors que l'intensité de la bande A se sature, celle de la bande C et de la bande E augmente lorsque la dose de neutrons augmente. Par contre, elle est aussi saturée lorsque le même cristal est soumis à des doses croissantes de rayons X.

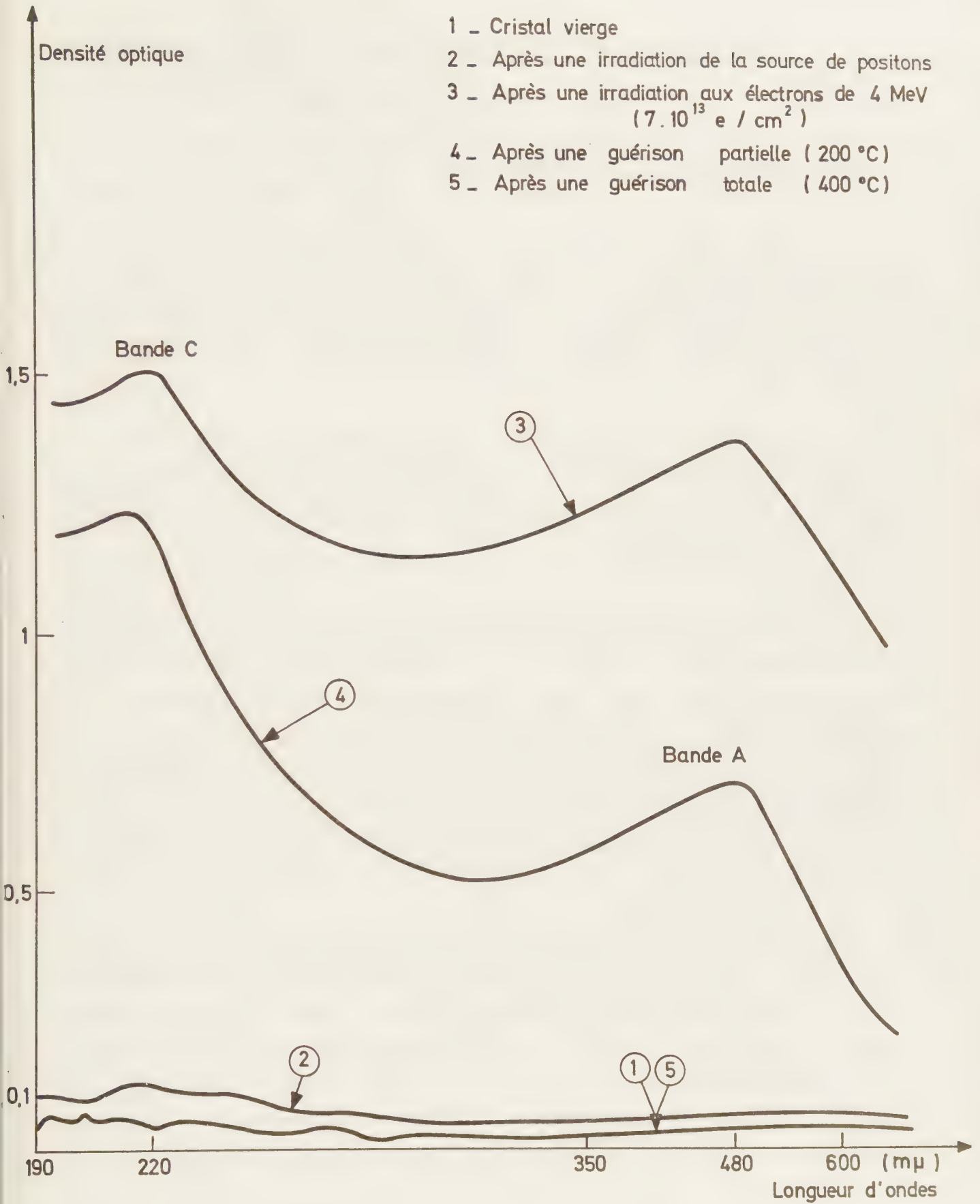


Fig. 29 - Bande d'absorption optique d'un cristal de quartz naturel
d'épaisseur : 5 mm , orienté suivant Z

DITCHBURNE / 44 / interprète ainsi ces résultats : L'irradiation aux neutrons provoque une augmentation du nombre de vacances O^{2-} qui existent initialement dans le cristal alors que l'irradiation aux rayons X produit uniquement des centres colorés avec les seules vacances présentes dans le cristal vierge.

Par blanchiment optique, seule une lumière de longueur d'onde voisine de la bande C régénère complètement le cristal. MITCHELL et PAIGE / 35 / en concluent que l'origine la plus probable de la bande C est un électron piégé dans une vacance O^{2-} et que la bande E est un trou piégé sur un ion oxygène interstitiel.

Le blanchiment thermique des centres colorés dépend de la température. Au-dessous de 500° , les centres sont blanchis mais non détruits et il faut atteindre une température de $900^{\circ}C$ pour que les défauts créés par irradiation et à l'origine des centres C formés soient régénérés / 35 /.

Les spectres d'absorption optique des quartz synthétiques irradiés aux neutrons ne présentent pas, en général, de centre A, les impuretés Al étant très faibles. De même, à la température ordinaire, aucun centre coloré ne peut être créé par irradiation aux électrons et aux rayons X, contrairement aux échantillons de quartz naturel, car en l'absence d'impuretés d'aluminium, les centres C formés sont thermiquement blanchis à la température de $300^{\circ}K$. Une irradiation à basse température provoque, par contre, l'apparition de centres C dont l'absorption optique peut être mesurée à basse température / 45 /.

IV.2.1 - Influence de l'irradiation aux électrons et aux neutrons sur l'intensité de la composante étroite

a) Cristal naturel

Nous avons étudié l'influence de l'irradiation aux électrons sur un cristal naturel où seule la composante étroite est résolue. La courbe de corrélation angulaire

est identique à celle montrée figure 18 et l'intensité de la composante étroite du cristal vierge est 1,3 %.

Nous avons irradié le cristal avec des électrons de 4 MeV dans le but de changer la concentration d'électrons et de trous piégés.

Quand la dose d'électrons est grande (2×10^{14} e/cm²/s), la composante étroite disparaît après 30 secondes d'irradiation. Pour des doses plus faibles, les variations de l'intensité de la composante étroite peuvent être comparées à la croissance des centres colorés A et C.

La concentration des centres A et C augmente avec la dose absorbée pour atteindre une valeur de saturation. L'intensité de la composante étroite décroît jusqu'à une valeur minimale (figure 30). Cette valeur est atteinte pour une dose absorbée pratiquement identique à celle où la saturation de la bande C se produit. Après un blanchiment thermique à 400° ou un blanchiment optique (lampe U.V. haute pression de mercure), nous retrouvons la valeur initiale de la composante étroite.

Si ce même cristal est irradié aux neutrons rapides, la composante étroite disparaît après exposition à un flux intégré de 10^{17} neutrons/cm². Le blanchiment thermique des centres colorés A et C formés est ensuite effectué en deux étapes. Un premier blanchiment à 500°C supprime les bandes d'absorption sans que la composante étroite réapparaisse sur les courbes de corrélation angulaire. Il faut atteindre une température de 900°C pour que cette composante étroite réapparaisse avec son intensité initiale. Ce résultat est en parfait accord avec celui de MITCHELL et PAIGE / 35 / qui observent, après irradiation aux neutrons rapides, un blanchiment des centres A et C formés par traitement thermique à 500°C, mais sans destruction des défauts créés à l'origine de ces centres colorés. La destruction des défauts créés par irradiation n'étant obtenue qu'après chauffage du cristal à 800°C, température à laquelle lacunes et interstitiels doivent se recombinaison.

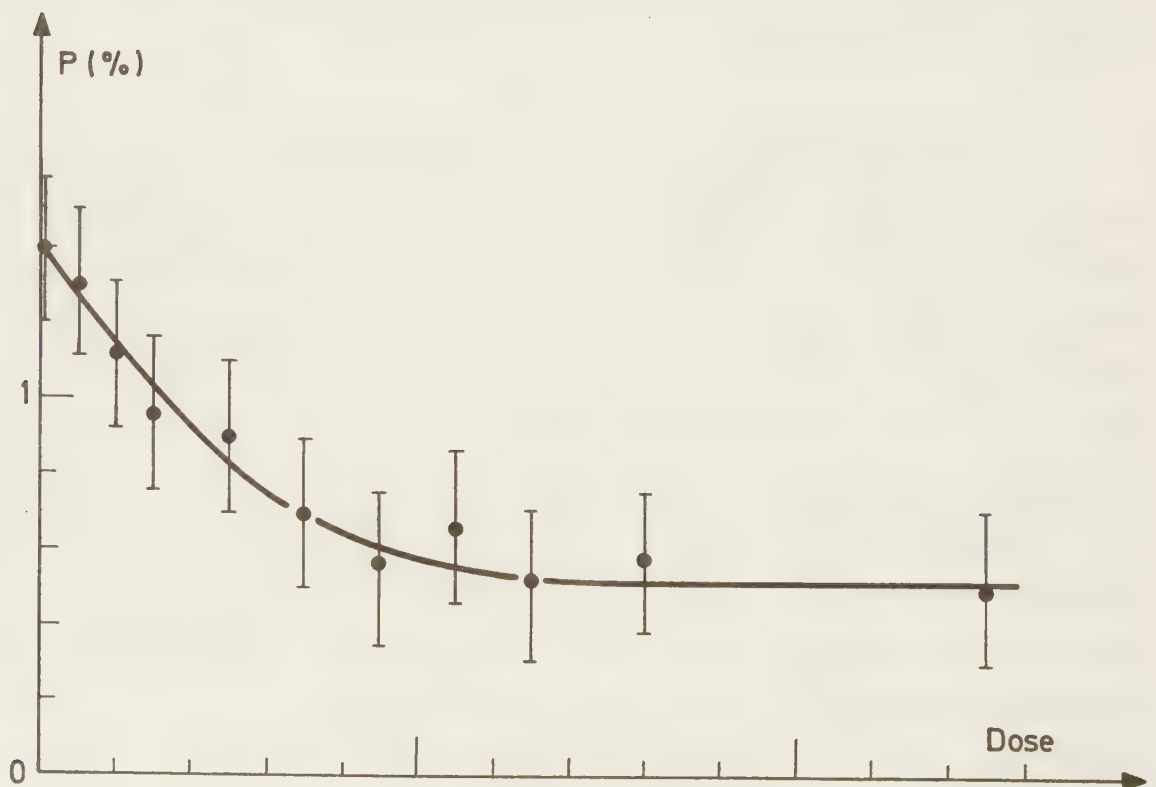
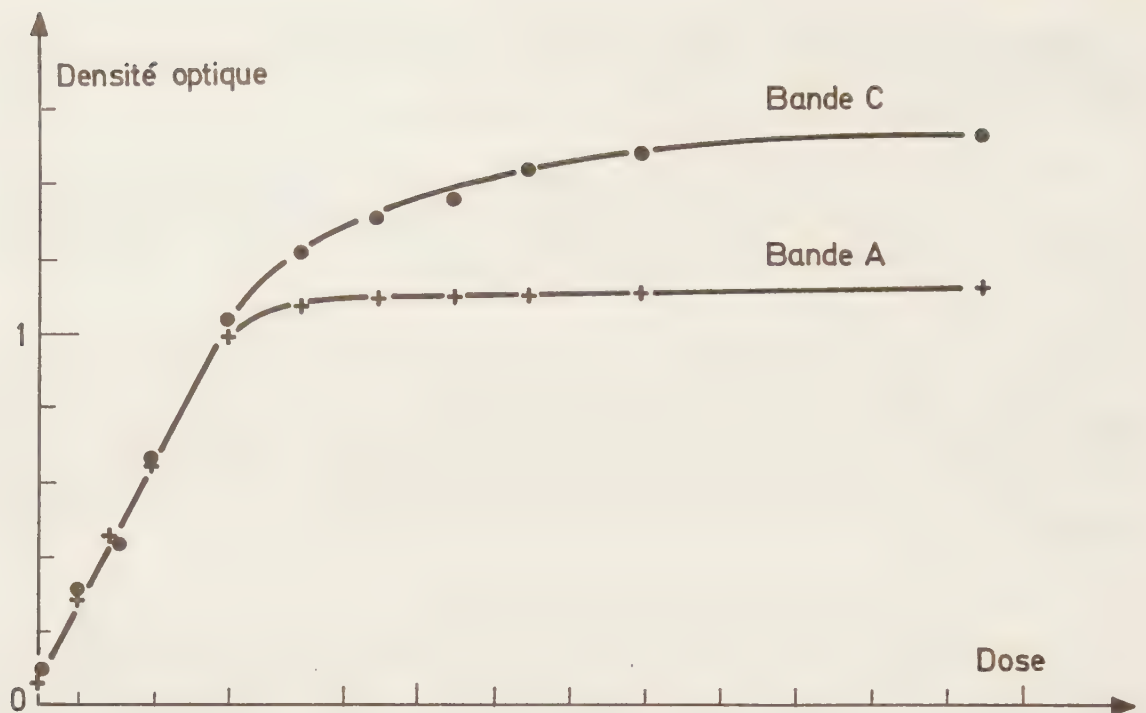


Fig. 30 - Variations de l'absorption des bandes A et C du spectre optique et de l'intensité de la composante étroite d'un cristal de quartz en fonction de la dose d'irradiation d'électrons de 4 MeV (1 dose = $2 \cdot 10^{13}$ e / cm²)

b) Cristal synthétique

L'irradiation d'un quartz synthétique aux électrons, qui ne produit pas de centres colorés, laisse inchangée l'intensité de la composante étroite. Celle-ci, par contre, est totalement supprimée par l'irradiation de ce même échantillon aux neutrons rapides pour un flux intégré de $1,7 \cdot 10^{17}$ neutrons/cm² qui provoque seulement l'apparition de centres C. Dans ce cas, un blanchiment à 500° pendant 4 h 30 provoque la réapparition de la composante étroite, mais avec une intensité seulement égale au tiers de l'intensité mesurée pour le cristal vierge. Un blanchiment prolongé à cette température ne modifie pas l'intensité de la composante étroite. L'intensité initiale n'est à nouveau obtenue qu'après blanchiment à 900°C.

Ces résultats montrent que le processus d'annihilation à l'origine de la composante étroite est très sensible à la présence de certains types de défauts créés dans le cristal par irradiation et, en particulier, à la présence de vacances O²⁻ à l'origine de la formation de centres C.

Il n'est cependant pas possible de conclure à une influence directe des vacances O²⁻ sur le processus d'annihilation qui donne naissance à la composante étroite. La relation entre l'intensité de cette composante et la concentration des centres C peut en effet n'être qu'apparente et refléter indirectement l'influence sur le processus d'annihilation d'un autre type de défaut donc la concentration varie parallèlement à celles des centres C.

Il apparaît cependant très clairement que la création de défauts, tout comme la présence d'impuretés d'aluminium, tend à diminuer l'intensité du processus d'annihilation à l'origine de la composante étroite. Ceci suggère que ce processus est caractéristique du cristal parfait et tend à disparaître quand d'autres processus d'annihilation, faisant intervenir des imperfections, sont susceptibles d'entrer en compétition avec lui, confirmant ainsi la sensibilité du positon à la présence de certains défauts.

IV.2.2 - Influence de l'irradiation aux neutrons sur les modulations d'un quartz synthétique

Nous avons étudié un quartz synthétique suivant la direction $[120]$ de faible teneur en aluminium (< 2 ppm), présentant une composante étroite de forte intensité (7 %) et des modulations importantes d'ordre 1 et 2. Une dose d'irradiation d'électrons de 4 MeV, égale à 3.10^{15} e/cm² ne modifie pas l'allure de la courbe de corrélation angulaire et aucune bande d'absorption n'apparaît.

Une dose d'irradiation de neutrons rapides de $1,7.10^{17}$ n/cm² provoque une très importante bande d'absorption C ($DO = 10/cm$) et une disparition totale des singularités.

Un premier blanchiment à 500°C pendant 4 h 30 supprime la bande C du spectre d'absorption tandis que l'intensité de la composante étroite est partiellement régénérée (3 %) et que seule la modulation d'ordre 1 apparaît sur les courbes de corrélation angulaire avec une intensité plus faible que l'intensité initiale, d'environ 50 %.

Plusieurs blanchiments successifs à 500°C n'ont pas modifié l'allure des courbes obtenues. Il faut atteindre une température de blanchiment de 800°C pour retrouver une distribution identique à celle du cristal vierge présentant des modulations d'ordre 1 et 2. Cette évolution est illustrée par les courbes de la figure 31.

Cette détérioration du cristal par irradiation aux neutrons élimine la structure fine et la composante étroite. Une guérison partielle des défauts entraîne l'apparition de la structure fine et de la composante étroite.

Cette évolution indique qu'il existe une relation très étroite entre l'existence et l'intensité de la composante étroite et des modulations. Ce résultat, en accord avec celui obtenu pour des échantillons présentant des teneurs différentes en aluminium, suggère que la composante étroite et les modulations ne reflètent qu'un seul processus d'annihilation du positon.

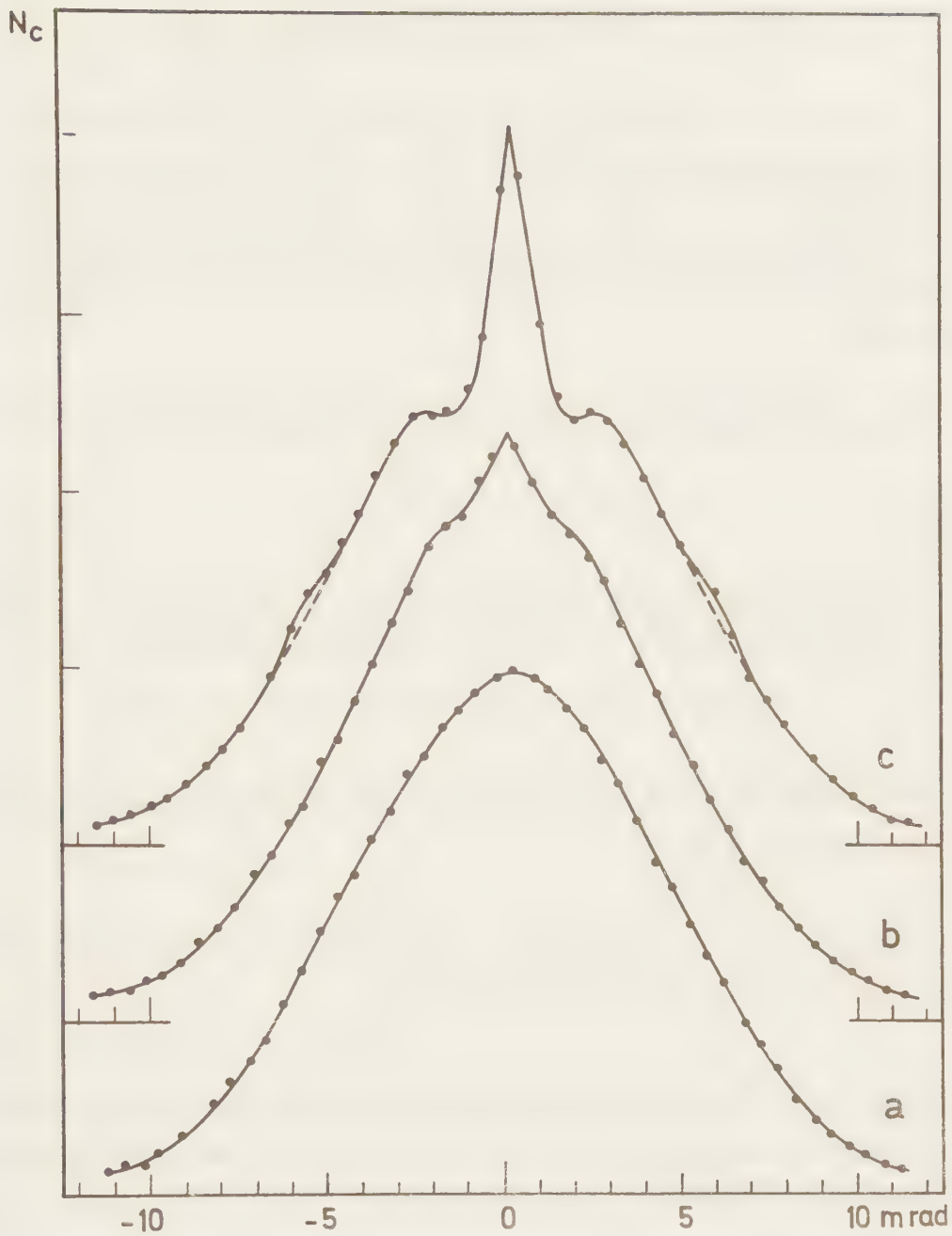


Fig 31- Influence de l'irradiation aux neutrons sur l'allure des courbes de corrélation angulaire des γ d'annihilation dans un cristal de quartz synthétique

- a) après un flux de $1,7 \cdot 10^{17}$ neutrons /cm²
- b) régénéré à 500 °C - 4 heures
- c) régénéré à 800 °C - 1/2 heure

V - Influence de la vitesse de croissance du cristal synthétique

HALL / 46 /, JONES et al. / 47 / ont montré que la concentration de défauts dans un cristal synthétique est fortement influencée par sa vitesse de croissance et de nombreuses publications sur le quartz ont attribué à la présence de tel défauts la variation des propriétés mécaniques / 48 /, électriques / 48 / et optiques / 49 / des cristaux synthétiques.

Nous avons analysé deux quartz synthétiques réalisés au C.N.E.T. à Lannion.

Ces deux échantillons ont été obtenus dans deux expériences dans lesquelles on a seulement fait varier le gradient de température de façon à modifier la vitesse de croissance.

Les vitesses de croissance respectives suivant la direction Z sont approximativement 0,1 mm/jour et 0,3 mm/jour.

L'intensité de la composante étroite pour le premier échantillon ($10 \pm 0,2$) % est nettement supérieure à l'intensité du second ($7 \pm 0,2$) %.

Ce résultat, bien que limité, est en accord avec les résultats précédents : le processus d'annihilation à l'origine de la composante étroite est très sensible à la présence d'imperfections du cristal dont la concentration dans ce type d'expériences est liée à la vitesse de croissance du cristal.

SIXIEME PARTIE : Interprétation des résultats expérimentaux

I - Influence de la structure électronique sur l'annihilation du positon

II - Description de l'état lié à l'origine de la composante étroite comme une fonction de Bloch

II.1 - Interprétation des modulations

II.2 - Influence de la température sur les modulations

III - Confirmation du modèle proposé

III.1 - Modulation suivant une direction quelconque

III.2 - Cas d'un polycristal

IV - Origine de l'état lié - Positonium

IV.1 - Temps de vie du Ps dans le quartz

IV.2 - Influence de la température sur l'élargissement de la composante étroite

IV.3 - Action d'un champ magnétique sur l'intensité de la composante étroite

IV.4 - Conclusion

CHAPITRE VI

INTERPRETATION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

I - Influence de la structure électronique sur l'annihilation du positon

Nous avons vu au Chapitre I que la fonction de corrélation angulaire observée à l'angle θ , exprimée en terme de moment suivant une direction du laboratoire $p_z = mc\theta$, est donnée par

$$I(p_z) = 2\pi \int_{p_z}^{\infty} \rho(p) p dp \quad (22)$$

un cristal parfait, la densité $\rho_k(p)$ peut être exprimée en termes du carré de la transformée de Fourier de la fonction d'onde positon - électron dans la cellule unité $A_{\vec{G}}(\vec{k})$. Pour les positrons thermalisés :

$$\rho(p) = \sum_{\vec{k}} \sum_{\vec{G}} \left| A_{\vec{G}}(\vec{k}) \right|^2 \delta(\vec{p} - \vec{k}, \vec{G}) \quad (23)$$

où $\vec{k}$ est le vecteur d'onde de l'électron qui s'annihile et $\vec{G}$ un vecteur quelconque du réseau réciproque.

Ceci exprime le fait qu'une paire de photons produite par l'annihilation d'un électron de vecteur d'onde $\vec{k}$ peut avoir une impulsion égale à $\vec{k}$ mais aussi à $\vec{k} + \vec{G}$ ($\hbar = 1$).

L'équation (22) peut donc être formellement écrite / 50 / comme

$$I(p_z) = E(p_z) F(p_z)$$

où $E(p_z)$ est égal au nombre d'états occupés dans le plan qui coupe perpendiculairement à la direction d'observation la structure de zone périodique à la distance p_z de l'origine dans l'espace des $\vec{k}$ et $F(p_z)$ est une fonction qui dépend des fonctions d'onde de l'électron et du positon. $E(p_z)$ à la périodicité du réseau réciproque et $F(p_z)$ doit décroître rapidement au delà de la première zone de Brillouin reflétant la variation de l'amplitude de la fonction d'onde du positon. Dans les terres rares / 51 / et certains autres métaux tels que Yttrium / 51 /, Zirconium / 52, 53 /, il en résulte une modulation au voisinage de la zone de Brillouin dans les distributions angulaires des γ d'annihilation.

La modulation observée dans MgO , UO_2 et F_2Ca au voisinage de la zone de Brillouin est à rapprocher de ce résultat. Dans ce cas cependant tous les états de la bande de valence sont occupés et la distribution angulaire calculée dans l'approximation d'électrons quasi libres montre qu'il n'y a pas de discontinuité dans la distribution de la quantité de mouvement pour une bande pleine / 18 /.

Cette distribution décroît très vite au voisinage de la zone de Brillouin et la modulation observée pourrait par exemple résulter de la composition de cette distribution avec celle beaucoup plus large résultant de l'annihilation avec des électrons du coeur.

Dans le cas du quartz, la présence d'une composante étroite indique l'existence d'un second processus d'annihilation de sorte que la distribution angulaire observée est la somme des distributions résultant de deux processus distincts et peut s'écrire :

$$I(p_z) = E(p_z) F(p_z) + f I'(p_z)$$

où f est un facteur compris entre 0 et 1 qui indique la fraction de positons s'annihilant par le processus à l'origine de la composante étroite et de la structure fine dont la distribution est désignée par $I'(p_z)$.

II - Description de l'état lié caractéristique de la composante étroite comme une fonction de Bloch

Supposons que le processus d'annihilation à l'origine de la composante étroite soit un état lié électron-positon décrit par une fonction de Bloch de la forme

$$\Phi(\vec{k}, \vec{r}) e^{i \vec{k} \cdot \vec{r}}$$

$\Phi(\vec{k}, \vec{r})$ étant une fonction périodique de période égale à celle du réseau direct où $\vec{r}$ est le vecteur positon du centre de gravité de la paire annihilée et $\vec{k}$ le vecteur des moments associés au déplacement.

La distribution observée due à l'annihilation de ce type d'état lié est :

$$I'(p_z) = \iint_{-\infty}^{+\infty} \sum_{\vec{G}} \left| \int_{\text{cellule}} e^{-i \vec{G} \cdot \vec{r}} \Phi(\vec{k}, \vec{r}) d\vec{r} \right|^2 \delta(\vec{p} - \vec{k}, \vec{G}) dp_x dp_y \quad (26)$$

L'existence d'un pic étroit à $\theta = 0$ nous permet d'écrire $\vec{k} \simeq 0$ et de faire l'approximation dans la cellule :

$$\Phi(\vec{k}, \vec{r}) \simeq \Phi(0, \vec{r})$$

de sorte que $I'(p_z)$ devient par un calcul identique à celui du paragraphe précédent

$$I'(p_z) = \iint_{-\infty}^{+\infty} \sum_{\vec{G}} \left| A_{\vec{G}}(0) \right|^2 \delta(\vec{p}, \vec{G}) dp_x dp_y$$

où

$$A_{\vec{G}}(0) = \int_{\text{cellule}} \Phi(0, \vec{r}) e^{-i \vec{G} \cdot \vec{r}} d\vec{r}$$

Ainsi la distribution des moments des photons issus de l'annihilation de ce type d'état lié est un ensemble de fonctions δ situées à des points $\vec{p} = n \vec{G}$ avec une intensité $\left| A_{\vec{G}}(0) \right|^2$ qui viendra se superposer à la distribution des moments des photons de l'annihilation libre du positron avec des électrons liés du cristal.

La méthode d'enregistrement des gammas d'annihilation par des longues fentes verticales doit faire apparaître la contribution de tous les vecteurs réciproques. En fait, ces pics secondaires ne seront bien résolus que dans les cas où la valeur $\left| A_{\vec{G}}(0) \right|^2$ correspondant au vecteur $\vec{G}$ ou à la somme des intensités $\left| A_{\vec{G}}(0) \right|^2$ de plusieurs vecteurs réciproques ayant même projection sur l'axe cristallographique étudié, est suffisante. Nous devons donc retrouver sur les courbes de corrélation angulaire des pics secondaires situés à $Pz_0 = \vec{G}_i \cdot \vec{n}_{hkl}$, $\vec{G}_i$ est un vecteur du réseau réciproque du cristal, $\vec{n}_{hkl}$ est le vecteur unitaire définissant la direction cristallographique étudiée. L'intensité de ces pics est alors :

$$\iint_{-\infty}^{+\infty} \sum_{\vec{G}_i} \left| A_{\vec{G}_i}(0) \right|^2 \delta(p_{z_0}, \vec{G}_i \cdot \vec{n}_{hkl}) dp_x dp_y \quad (29)$$

C'est effectivement ce que nous observons expérimentalement dans le quartz et dans F_2Mg .

Ce résultat est illustré sur les figures 32 et 33 où sont schématisés les réseaux réciproques du quartz dans un plan normal à l'axe Z et du fluorure de magnésium dans un plan normal à la direction $[001]$.

Ainsi en admettant que l'état lié à l'origine de la composante étroite est décrit par une fonction de Bloch se propageant à travers le cristal, l'ensemble des singularités obtenues expérimentalement peut être expliqué. Les modulations reflètent alors les composantes de Fourier de grand moment de la fonction de Bloch définissant ce type d'annihilation.

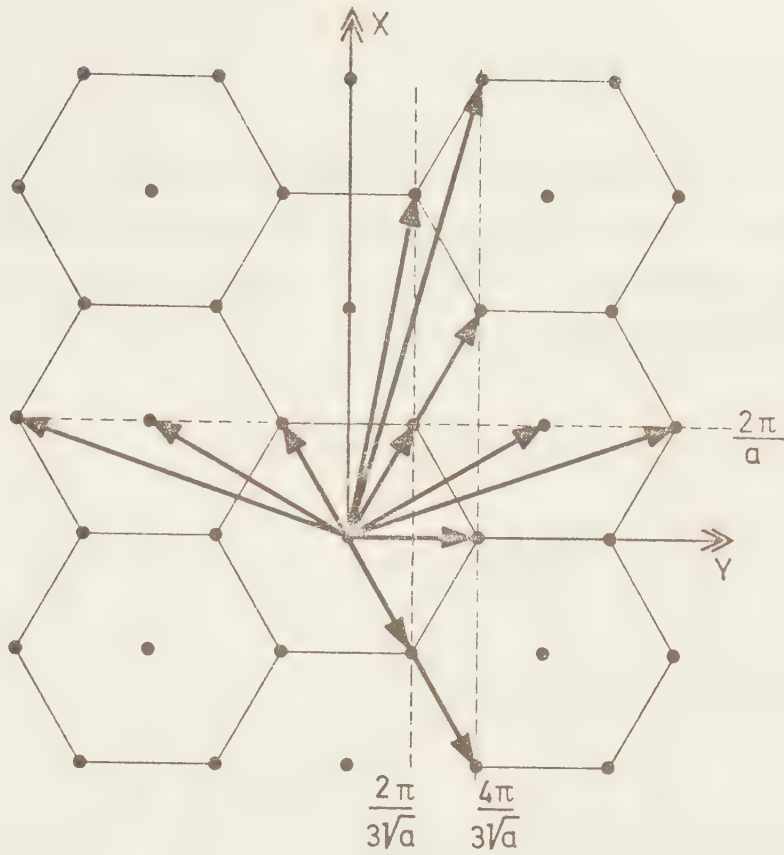


Fig. 32. Contribution des vecteurs réciproques du quartz suivant X et Y pour l'existence de modulation à $\frac{2\pi}{a}$, $\frac{2\pi}{3\sqrt{a}}$ et $\frac{4\pi}{3\sqrt{a}}$

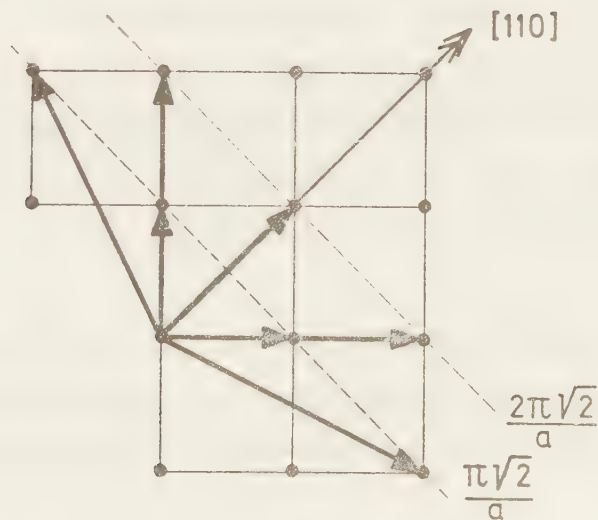


Fig. 33. Contribution des vecteurs réciproques de $F_2 Mg$ suivant [110] pour l'existence des modulations à $\frac{\pi\sqrt{2}}{a}$ et $\frac{2\pi\sqrt{2}}{a}$

11.2 - Influence de la température

Nous avons jusqu'à présent considéré un réseau fixe. En réalité chaque point du réseau sous l'influence de la température oscille autour d'une position moyenne d'équilibre avec une amplitude $\langle U^2(T) \rangle$ et les facteurs de Debye-Waller doivent être introduits dans les formules précédentes.

L'intensité d'un pic à p_{z0} qui s'écrivait :

$$I'(p_{z0}) = \iiint_{-\infty}^{+\infty} \sum_i \left| A_{\vec{G}_i}(0) \right|^2 \delta(p_{z0}, \vec{G}_i \cdot \vec{n}_{hkl}) dp_x dp_y$$

s'écrira en tenant compte de la température

$$I'(p_{z0}, T) \simeq \iiint_{-\infty}^{+\infty} \sum_i \left| A_{\vec{G}_i}(0) e^{-W(\vec{G}_i, T)} \right|^2 \delta(p_{z0}, \vec{G}_i \cdot \vec{n}_{hkl}) dp_x dp_y \quad (11)$$

où

$$2W(\vec{G}_i, T) = G_i^2 \langle U_{\vec{G}_i}^2(T) \rangle$$

et $\langle U_{\vec{G}_i}^2(T) \rangle$ est l'amplitude quadratique moyenne d'oscillation d'un atome en équilibre thermique à la température T suivant la direction $\vec{G}_i$.

Cependant l'influence sur $I'(p_{z0}, T)$ des facteurs de Debye-Waller relatifs aux premiers vecteurs réciproques est peu importante et la diminution d'intensité des modulations sera faible même à haute température.

Par contre, l'augmentation de la quantité de mouvement de la paire électron-positon sous l'influence de la température entraîne un élargissement de la composante étroite et par suite des modulations, phénomène qui n'existe pas dans la diffraction des rayons X.

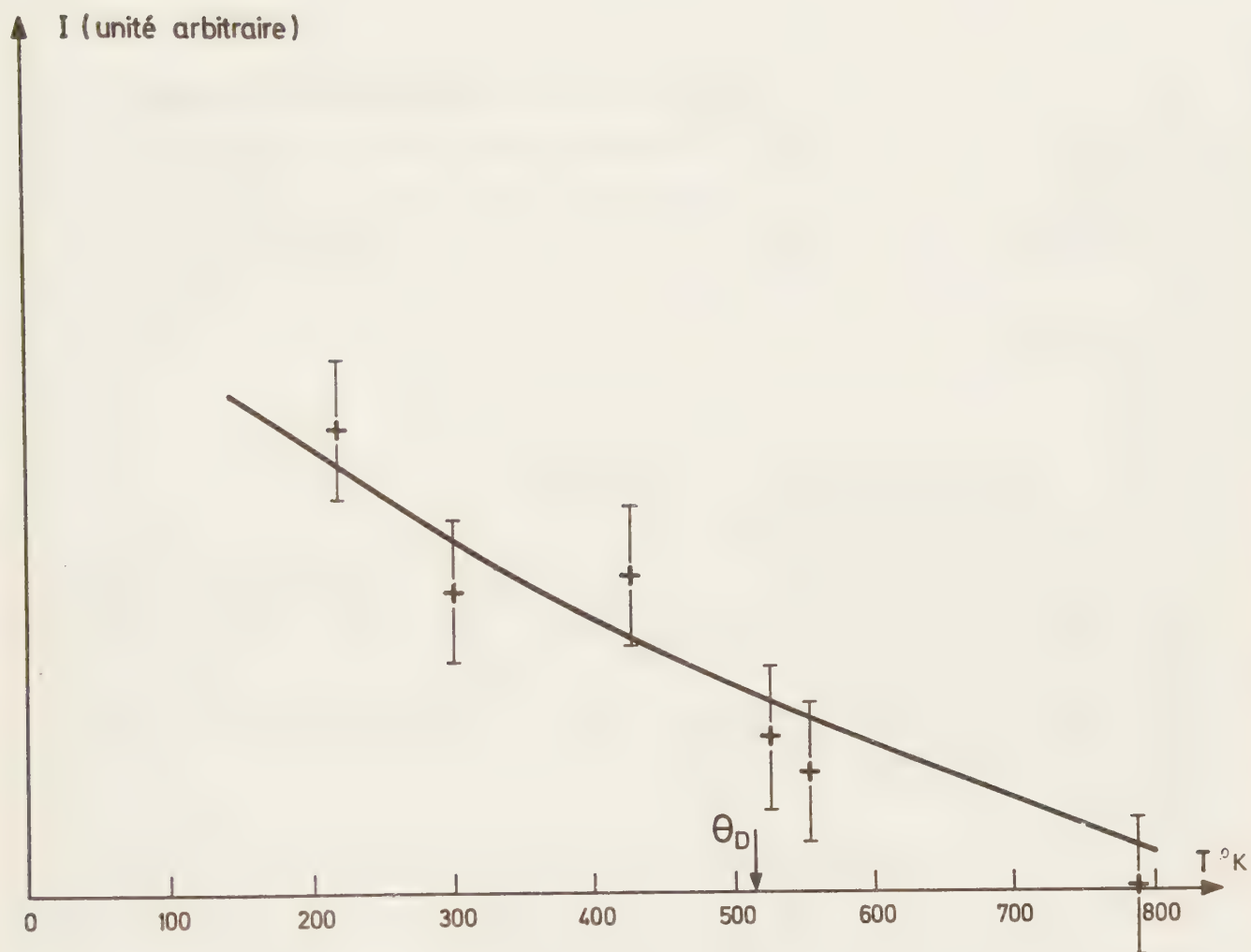


Fig. 34 - Variation de l'intensité de la modulation située à $\frac{4\pi}{3\sqrt{a}}$ d'un cristal de quartz étudié suivant Y en fonction de la température

L'élargissement des modulations est difficile à résoudre expérimentalement et l'influence de la température se traduit par une diminution apparente de l'intensité due à un lissage des modulations.

Cette diminution d'intensité est trouvée expérimentalement en étudiant l'évolution de la modulation d'ordre 2 sur la courbe de corrélation d'un quartz synthétique orienté suivant Y' en fonction de la température. Cette évolution est représentée figure 34. Pour des valeurs supérieures à 800°K la modulation n'est plus résolue expérimentalement.

III - Confirmation du modèle proposé

III.1 - Modulation suivant une direction quelconque

Nous avons toujours choisi jusqu'alors des échantillons de quartz orientés suivant une direction cristallographique simple X , Y ou Z de façon à relier la position des modulations aux caractéristiques du réseau réciproque. Nous avons vu que ces modulations sont situées aux extrémités des vecteurs réciproques ou à leurs projections sur la direction cristallographique étudiée.

Pour confirmer ces résultats nous avons taillé un échantillon suivant une direction quelconque 0ω à 15° de l'axe Y , et calculé la position théorique des modulations en projetant les vecteurs réciproques sur la direction 0ω (figure 35).

Le très bon accord théorique et expérimental obtenu confirme la validité de notre hypothèse.

III.2 - Cas d'un échantillon polycristallin

Nous devons alors intégrer dans toutes les directions chaque vecteur réciproque $\vec{G}$. En appelant g , θ , φ les coordonnées polaires de $\vec{G}$ nous avons une nouvelle distribution des moments :

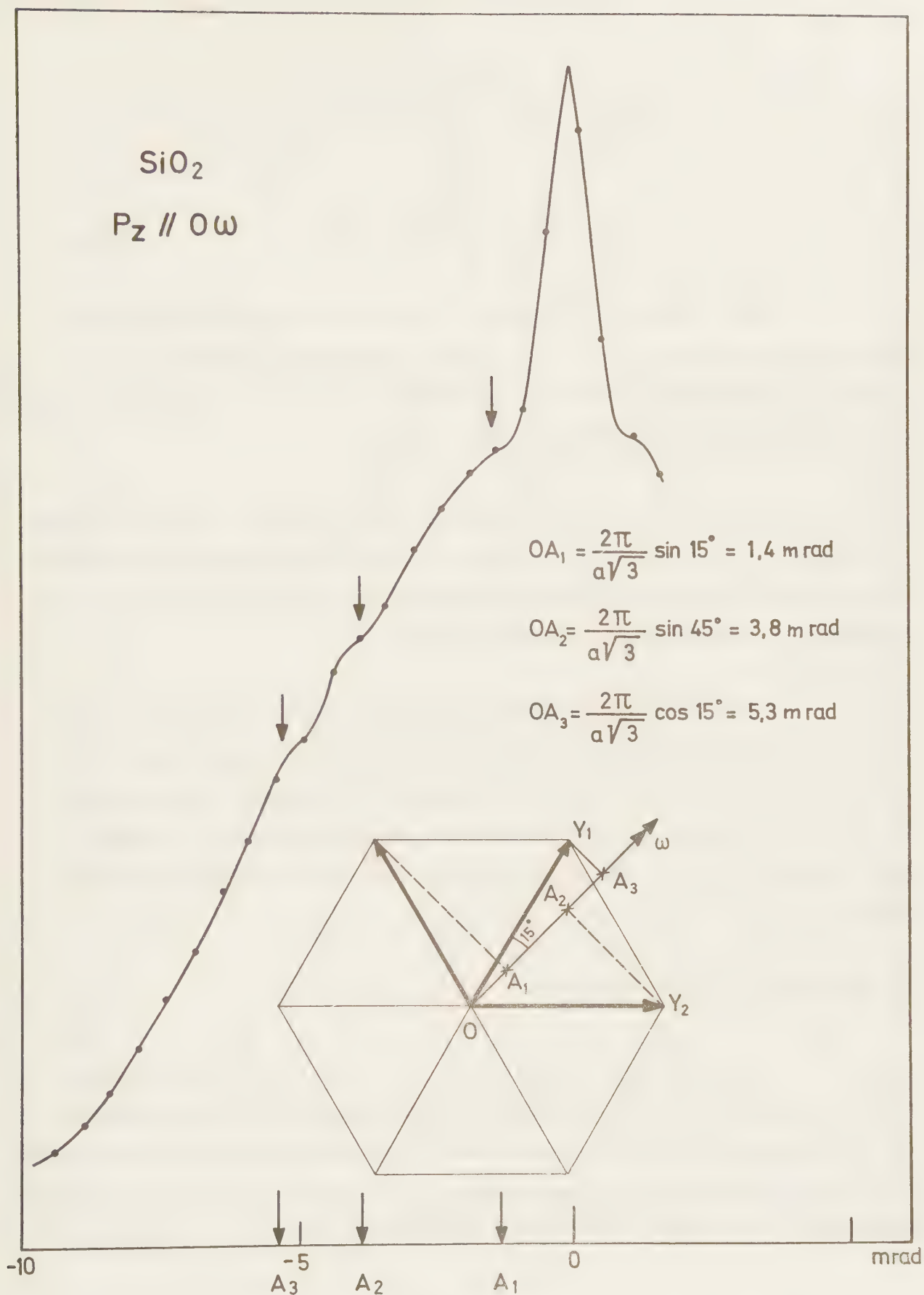


Fig. 35 - Courbe de corrélation angulaire d'un quartz orienté suivant la direction $O\omega$ à 15° de Y_1 . La maille dessinée au milieu de la figure permet de calculer la position des modulations

$$\rho'(\mathbf{p}) \propto \sum_{\mathbf{g}} \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\pi} \left| A_{\vec{\mathbf{G}}}(\mathbf{0}) \right|^2 \delta(\vec{\mathbf{p}}, \vec{\mathbf{G}}) \sin \theta d\theta$$

où

$$\rho'(\mathbf{p}) \propto \sum_{\mathbf{g}} \left| A_{\vec{\mathbf{G}}}(\mathbf{0}) \right|^2 \delta(|\vec{\mathbf{p}}| - g) \quad (31)$$

Nous ne devons plus retrouver sur les courbes de corrélation angulaire des pics secondaires situés à $P_{z0} = n \vec{\mathbf{G}} \cdot \vec{\mathbf{n}}_{hkl}$ mais une contribution continue entre $-g < p_z < +g$ se superposant à la distribution large et se manifestant par un changement de pente sur la courbe de corrélation angulaire $p_z = g$.

Nous avons montré expérimentalement ce phénomène en réduisant en poudre un monocristal de quartz synthétique présentant un pic étroit et des modulations caractéristiques suivant l'axe cristallographique étudié. Ce cristal est pulvérisé et introduit dans un réservoir. La courbe obtenue est représentée figure 37 a.

La composante étroite subsiste avec une intensité voisine de celle du monocristal et un changement de pente sur la courbe apparaît pour une valeur de $p_z = \pm 4,4$ mrad qui correspondant à la valeur de $g = |\vec{\mathbf{G}}_{0001}|$. Ce changement de pente apparaît très nettement en dérivant la courbe (figure 37 b). Un second changement de pente devrait apparaître à $P_z = \pm |\vec{\mathbf{G}}_{10\bar{1}0}| = \pm 5,5$ mrad mais il n'est pas résolu expérimentalement.

IV - Origine de l'état lié : Positonium

La composante étroite observée dans les courbes de corrélation angulaire suggère la formation de positonium dont l'annihilation dans l'état para se caractérise par une telle composante. Bien qu'en principe interdite dans les cristaux ioniques, l'hypothèse de formation de positonium dans le quartz, dont le caractère ionique est faible, ne paraît pas en effet invraisemblable. Pour tenter de caractériser la présence de positonium, nous

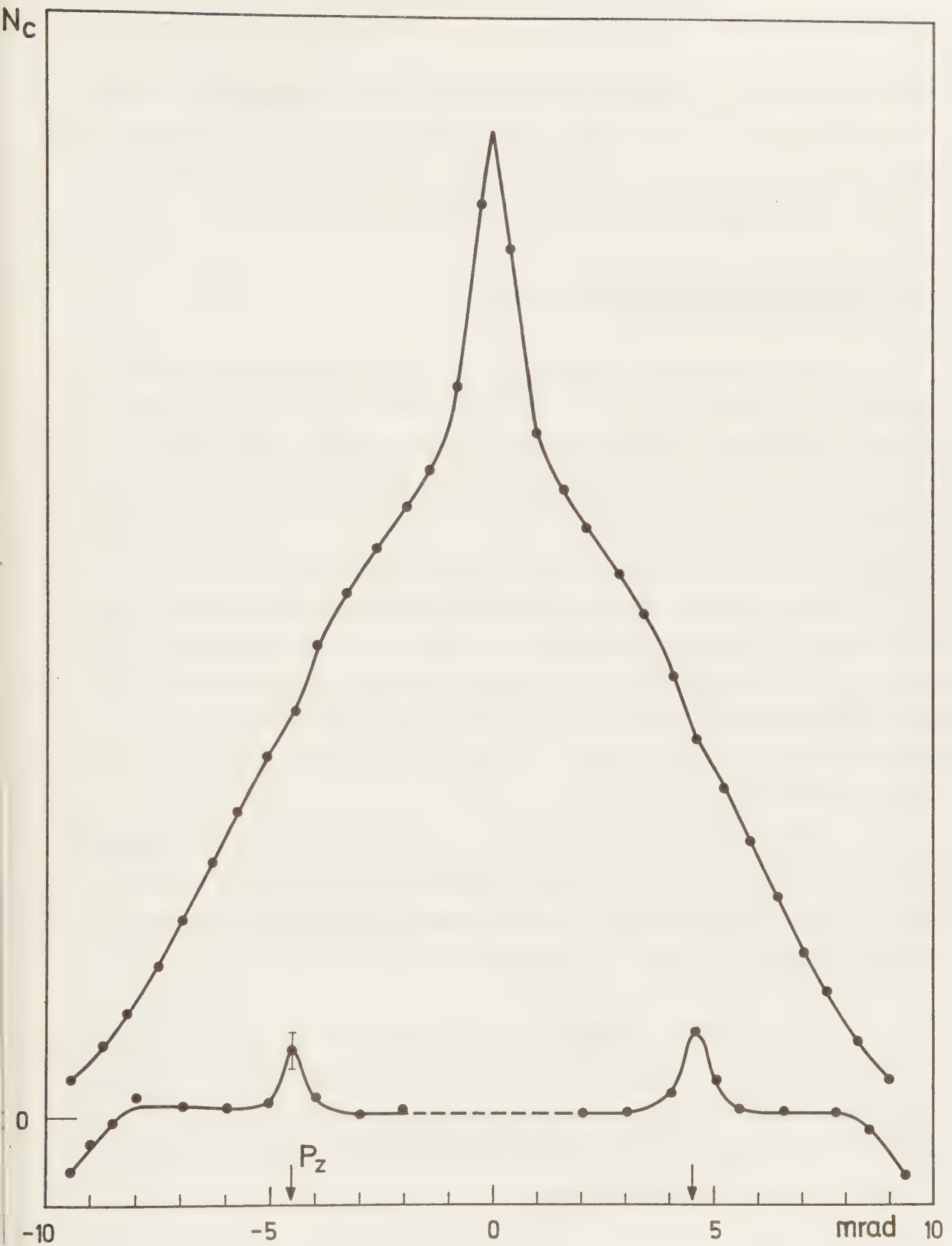


Fig. 36 _ Courbes de corrélation angulaire d'un quartz réduit en poudre
La courbe dérivée est tracée au bas de la figure

avons utilisé l'échantillon de quartz synthétique dont la courbe de corrélation angulaire est représentée figure 19. L'intensité de la composante étroite, obtenue en extrapolant l'allure de la composante large au voisinage de zéro et en calculant la surface de la composante étroite rapportée à la surface totale, est de $5 \pm 0,2 \%$.

IV.1 - Temps de vie du positon dans le quartz

Dans l'hypothèse de formation du positonium, l'intensité mesurée pour la composante étroite indique que 5 % des positons s'annihilent après formation de parapositonium. En raison de la probabilité relative de positonium dans les états para et ortho, qui est de $1/4$ à $3/4$, ceci signifie en outre que 15 % des positons doivent former de l'orthopositonium avant de s'annihiler. Comme, en général, la vie moyenne du positon ayant formé de l'ortho-positonium est supérieure à la vie moyenne des positons qui s'annihilent librement, nous avons essayé de mettre en évidence une composante lente caractéristique de la formation d'ortho-positonium dans le spectre de temps de vie. Ce spectre, mesuré à l'aide d'un convertisseur temps amplitude dont la résolution à mi-hauteur mesurée avec du ^{60}Co est de 2.10^{-10} s ne permet pas d'identifier une telle composante lente. Une seule vie moyenne $\tau = 3.10^{-10}$ s est en effet observée.

Ce résultat n'autorise pas toutefois à conclure définitivement à l'inexistence de Ps dans le quartz où la forte densité électronique peut être à l'origine d'un taux de pick-off de l'ortho-positonium si élevé que sa vie moyenne, abrégée par ce mécanisme, ne peut être distinguée de la vie de l'annihilation libre.

Il est à remarquer que dans ce cas, la présence d'ortho-positonium ne peut que très difficilement être établie par l'émission des trois rayons gamma qui caractérisent son annihilation libre. La seule preuve expérimentale capable de révéler de manière indiscutables son existence serait une variation de l'intensité de la composante étroite sous l'action d'un champ magnétique intense.

Cette expérience a été réalisée par le Pr. BERKO sur l'un de nos échantillons, notre installation ne comportant pas d'aimant.

Les résultats obtenus seront présentés au paragraphe IV.3 .

Examinons auparavant l'influence de la température sur la composante étroite.

IV.2 - Influence de la température sur l'élargissement de la composante étroite

La mesure de la largeur à mi-hauteur de la composante étroite fournit l'impulsion maximum de la paire positon-électron qui s'annihile.

Si à l'instant de l'annihilation, les positons sont en équilibre thermique avec le milieu à la température T , la distribution des moments de positons sera :

$$g(p_+, T) = \frac{A}{(2mkT)^{1/2}} \exp\left(-\frac{p_+^2}{kT 2m}\right) \quad (32)$$

Supposons $p_{e^-} \simeq 0$, nous observons une distribution des moments au voisinage de $\theta = 0$ à la température T :

$$I(p, T) \propto \text{Cte} \int_{p_z}^{\infty} dp p \exp\left(-\frac{p^2}{2m kT}\right) \times \frac{1}{\sqrt{2mkT}}$$

ou

$$I(p, T) = I_0 e^{-\frac{p_z^2}{2mKT}} \quad (33)$$

La largeur à mi-hauteur d'une telle distribution est en milliradians :

$$\delta_{e^+}(T) \simeq 1,4 \frac{\sqrt{2mkT}}{mc}$$

Si nous sommes en présence de Ps , $m_{Ps} = 2m$:

$$\delta_{Ps}(T) = \sqrt{2} \delta_{e^+}(T) \quad (34)$$

Une augmentation de température provoquera un élargissement à mi-hauteur de cette composante suivant la loi de variation définie par la relation (34).

Les valeurs expérimentales corrigées de la résolution instrumentale ainsi que les variations théoriques sont reportées sur la figure 37. Entre 220°K et 800°K, la largeur à mi-hauteur mesurée augmente linéairement avec la racine carrée de la température. Cette variation apparaît en bon accord pour cette gamme de température avec celle de la quantité de mouvement du centre de gravité d'une paire positon-électron liée sous forme de positonium.

Cet accord, s'il prouve que la formation de Ps est une hypothèse vraisemblable ne suffit pas toutefois à apporter une preuve irréfutable de la réalité de cette hypothèse. Cette preuve devrait, en principe, pouvoir être apportée par l'action très spécifique d'un champ magnétique.

IV.3 - Action d'un champ magnétique sur l'intensité de la composante étroite

Nous savons que la structure du positonium peut se présenter sous deux états : l'état triplet ou orthopositonium (3S_1) où les spins de l'électron et du positon sont parallèles et l'état singulet (1S_0) où les spins de l'électron et du positon sont anti-parallèles.

Le nombre quantique total de l'état $3S_1$ est $J_T = 1$ et trois sous-états du nombre quantique magnétique $m = 1, 0, -1$ sont présents. Pour l'état $1S_0$, $J_S = 0$ et par suite $m = 0$.

1 - annihilation e^+ libre , $p_e \approx 0$

2 - formation de P_S

○ résultats expérimentaux

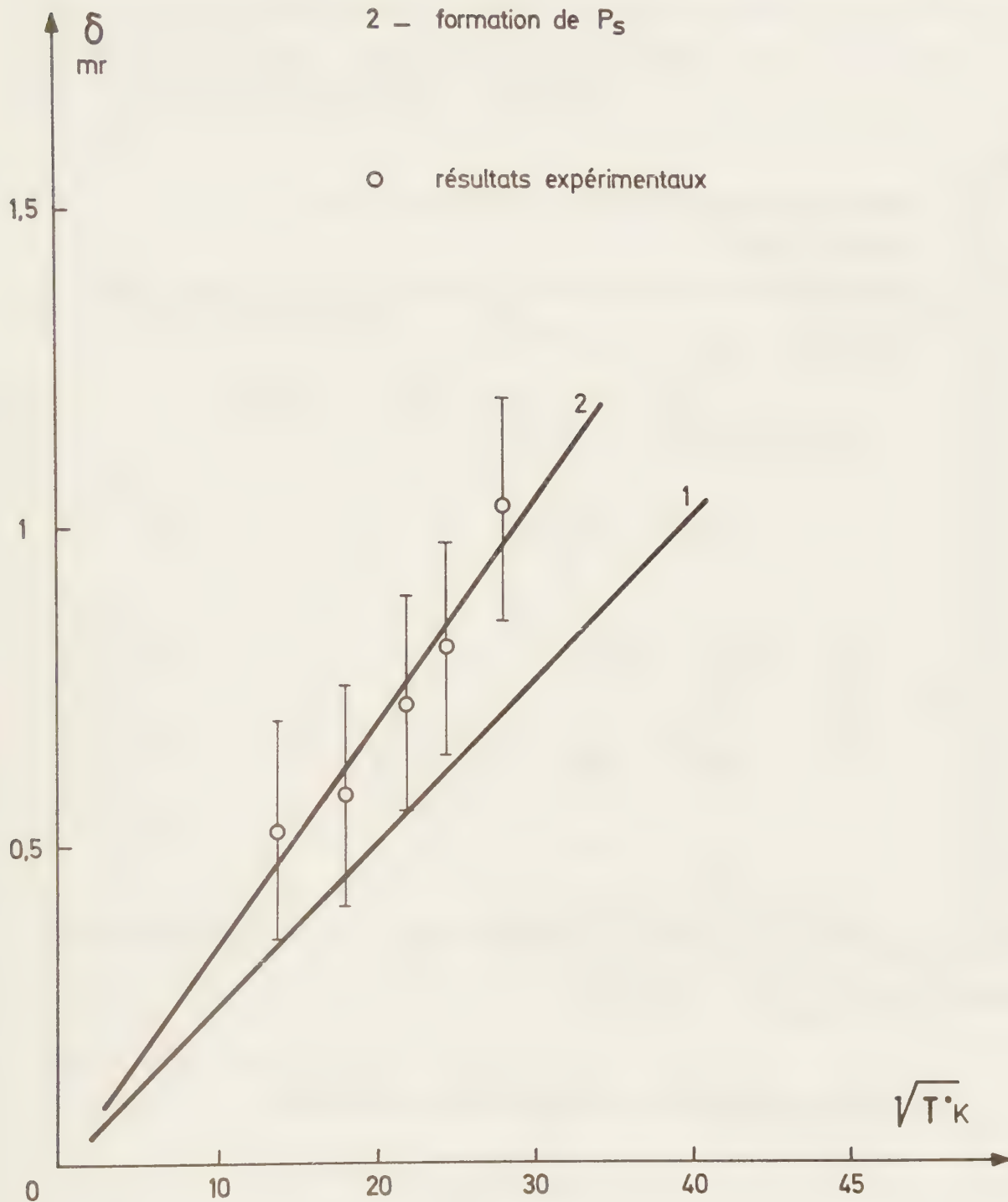


Fig. 37_ Variation de la largeur du pic à mi-hauteur en fonction de la température
Les courbes tracées correspondent aux variations théoriques suivant le processus d'annihilation considéré.

Les niveaux d'énergie d'un tel système sont décrits par l'hamiltonien :

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + A (\hat{\sigma}_1, \hat{\sigma}_2) \quad (35)$$

où

$\hat{H}_0$ contient les termes d'énergie cinétique et potentielle,
 A est une constante,
 $\hat{\sigma}_1$ et $\hat{\sigma}_2$ représentent des vecteurs dont les composantes sont les matrices de Pauli relatives à l'électron (1) et au positon (2).

Les fonctions d'onde du positonium peuvent alors s'écrire :

$$^1S_0 \quad \psi_{00} = \frac{1}{\sqrt{2}} (\alpha_1 \beta_2 - \alpha_1 \beta_2) \quad m = 0$$

$$^3S_1 \quad \psi_{1,1} = \alpha_1 \alpha_2 \quad m = 1$$

$$\psi_{1,0} = \frac{1}{\sqrt{2}} (\alpha_1 \beta_2 + \beta_1 \alpha_2) \quad m = 0$$

$$\psi_{1,-1} = \beta_1 \beta_2 \quad m = -1$$

où α_n, β_n sont les composantes des fonctions de spin α et β représentées par les matrices $\alpha = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$ et $\beta = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$.

Les valeurs propres de l'énergie de l'état triplet sont :

$$E_{1,0} = E_{1,\pm 1} = A$$

La valeur propre de l'état singulet est :

$$E_{00} = -3A$$

Par suite, les états $1S_0$ et $3S_1$ sont séparés par un intervalle d'énergie égal à $\Delta W = 4A = 2.10^5 \text{ Mc/S} = 8,4.10^{-4} \text{ eV}$. Cette séparation des niveaux des états $1S_0$ et $3S_0$ peut être accentuée par l'action d'un champ magnétique externe (effet Zeemann). L'hamiltonien (35) devient alors :

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + A(\hat{\sigma}_1 \hat{\sigma}_2) + \mu_B(\hat{\sigma}_{1z} - \hat{\sigma}_{2z}) \quad (36)$$

où μ_B est le magnéton de Bohr.

La résolution du problème aux valeurs propres :

$$\begin{vmatrix} A - \lambda & 0 & 0 & 0 \\ 0 & A - \lambda & 0 & 2\mu_B H \\ 0 & 0 & A - \lambda & 0 \\ 0 & 2\mu_B H & 0 & -3A - \lambda \end{vmatrix}$$

donne

$$\lambda_{1,2} = \lambda_{1,\pm 1} = A$$

$$\lambda_{3,4} = -A \pm 2 \sqrt{A^2 + \mu_B^2 H^2}$$

et les fonctions d'onde du Ps deviennent alors :

$$\psi_{1,1} = \alpha_1 \alpha_2$$

$$\psi_{1,-1} = \beta_1 \beta_2$$

$$\psi_3 = x \psi_{1,0} + [1 + 1 + x^2] \psi_{00}$$

$$\psi_4 = [1 - 1 + x^2] \psi_{1,0} + x \psi_{00}$$

(37)

Si l'on pose $x = \frac{4 \mu_B H}{\Delta W}$ la présence du champ magnétique mélange les états singulet et triplet et va modifier les temps de vie du positon dans les états $m = 0$.

Ainsi le temps de vie de l'état triplet $m = 0$ devient :

$$\frac{1}{\tau_T} = \frac{P_S}{\tau_S} + \frac{P_T}{\tau_T}$$

où P_S et P_T représentent les probabilités pour que l'état triplet s'annihile soit dans l'état singulet, soit dans l'état triplet.

Le mélange de l'état singulet à $\psi_{1,0}$ est :

$$Y^2 = \left(\frac{\sqrt{1+x^2}-1}{x} \right)^2$$

P_T et P_S s'expriment alors comme :

$$P_T = \frac{1}{1+Y^2} \quad \text{et} \quad P_S = 1 - \frac{1}{1+Y^2} = \frac{Y^2}{1+Y^2}$$

d'où finalement, le nouveau taux d'annihilation de l'état triplet $m = 0$ sera

$$\frac{1}{\tau'_T} = \frac{1}{\tau_T} = \frac{Y^2}{1+Y^2} \frac{1}{\tau_S} + \frac{1}{1+Y^2} \frac{1}{\tau_T} \quad (38)$$

et une nouvelle vie τ'_T apparaîtra dans le spectre de temps de vie.

De même le temps de vie de l'état singulet sera modifié sous l'influence du champ magnétique et deviendra :

$$\frac{1}{\tau'_S} = \frac{1}{\tau_S} = \frac{Y^2}{1+Y^2} \frac{1}{\tau_T} + \frac{1}{1+Y^2} \frac{1}{\tau_S} \quad (39)$$

L'influence du champ magnétique va également se manifester dans les mesures de corrélation angulaire en modifiant l'intensité de la composante étroite caractéristique de l'annihilation de l'état singulet. Si I_0 est l'intensité de la composante étroite pour $H = 0$, lorsque le champ magnétique est différent de 0, nous avons :

$$I_H = I_0 \left(\frac{1}{1 + Y^2 \frac{\tau_S}{\tau_T}} + \frac{1}{1 + \frac{1}{Y^2} \frac{\tau_S}{\tau_T}} \right) \quad (40)$$

Il faut cependant corriger cette formule, le sens du champ modifiant pour des positons polarisés les populations relatives des états triplet $m = 0$ et singulet formés, qui sont égales en l'absence de champ. Cette variation de population pour des positons entièrement polarisés, est décrite par la relation / 54 / :

$$\epsilon = \frac{x}{1 + x^2} \quad (41)$$

La géométrie utilisée : source, échantillon, champ magnétique ne permet pas d'obtenir des positons entièrement polarisés et un facteur correctif P doit être appliqué pour tenir compte du degré de polarisation que possèdent en moyenne les positons qui s'annihilent dans l'échantillon.

Finalement, connaissant l'intensité de la composante étroite I_0 en l'absence de champ magnétique, l'intensité de cette composante en présence de champ magnétique s'exprime par la relation :

$$I_H = I_0 \left(\frac{1 + \epsilon P}{1 + Y^2 \frac{\tau_S}{\tau_T}} + \frac{1 - \epsilon P}{1 + \frac{1}{Y^2} \frac{\tau_S}{\tau_T}} \right) \quad (42)$$

Cette variation permet donc de calculer les variations d'intensité de la composante étroite en fonction du champ magnétique et de son orientation, à condition de connaître

le degré de polarisation P , la différence d'énergie ΔW entre les états ortho et para et la vie moyenne de l'état triplet τ_T dans l'échantillon pour $H = 0$.

Les mesures de ces variations et leur comparaison avec les prédictions théoriques doivent donc permettre de déterminer la validité de l'hypothèse qui attribue la composante étroite observée à l'annihilation de para-positonium.

Ces résultats obtenus par BERKO sur un quartz synthétique / 55 / sont représentés sur la figure 39 où ils sont comparés aux variations calculées par la formule (42) pour différentes valeurs de τ_T , en choisissant une polarisation moyenne des positons $P = 0,5$ et en supposant que ΔW dans l'échantillon est celui du positonium dans le vide. Dans ces conditions, on peut constater que ces variations enregistrées pour les deux orientations du champ sont en bon accord avec celles calculées pour du positonium dont la vie moyenne de l'état triplet dans l'échantillon, en l'absence de champ, serait de $\tau_T = 1,13 \cdot 10^{-9}$ s. Il semble donc raisonnable de conclure à la formation de positonium dans le quartz. Il faut cependant remarquer que la vie moyenne de l'état triplet τ_T ainsi calculée n'est pas confirmée par l'expérience. Le spectre de temps de vie du positon dans le quartz ne fait en effet apparaître qu'une seule composante $\tau = 3 \cdot 10^{-10}$ s ; ce qui signifie que la vie moyenne de l'état triplet n'est certainement pas supérieure à cette valeur.

Il y a donc là un désaccord d'un facteur 3 entre la théorie et l'expérience. Cependant, la valeur calculée de τ_T dépend étroitement des hypothèses retenues concernant les valeurs de P et de ΔW ($P = \frac{1}{2}$, $\Delta W_{\text{quartz}} = \Delta W_{\text{vide}}$).

Nous avons donc cherché à lever (en partie) ce désaccord en faisant varier tout à tour ces deux quantités.

La valeur supposée de $P = 0,5$ paraissant très raisonnable, nous avons tout d'abord fait varier P au voisinage de cette valeur pour voir dans quelle mesure l'accord

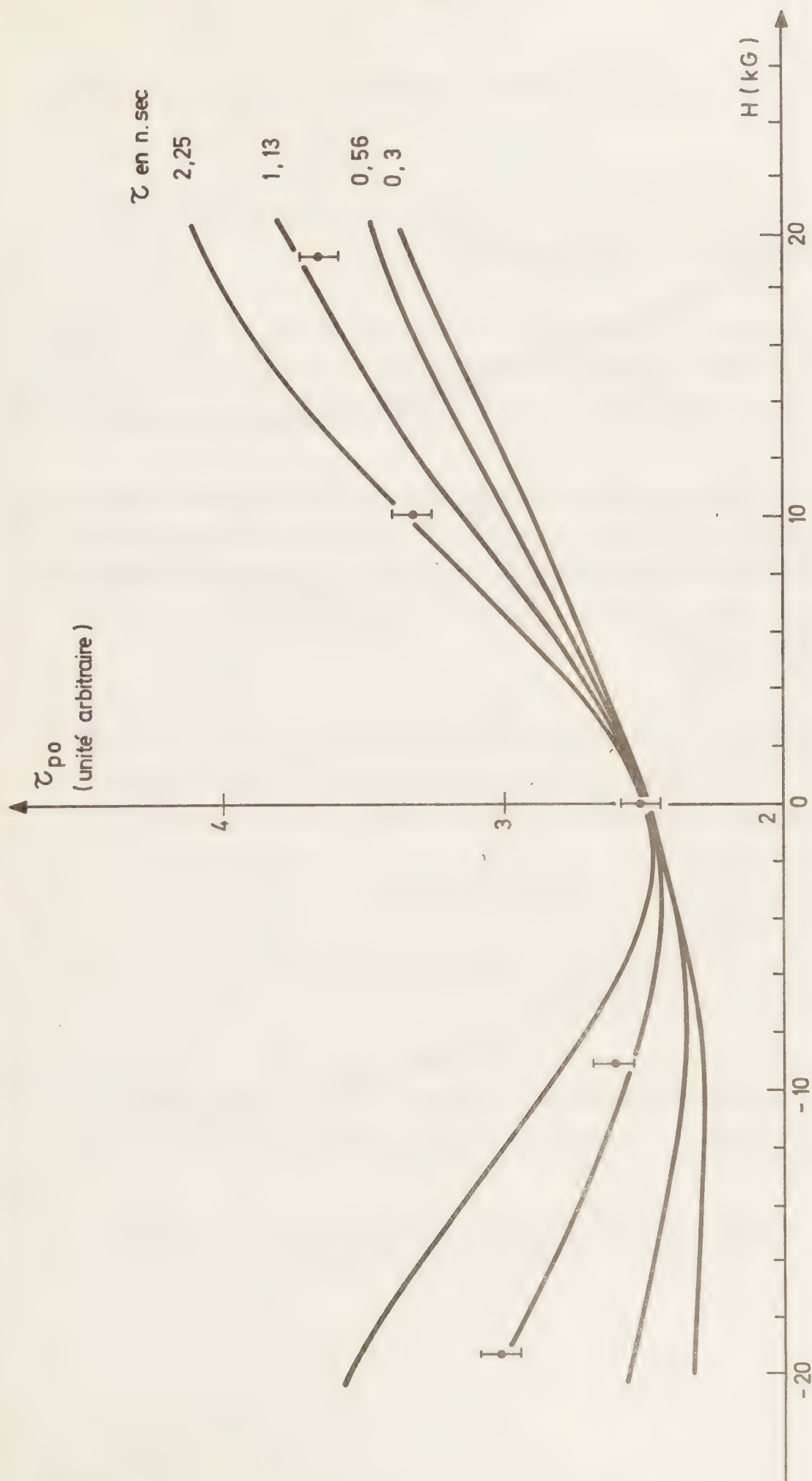


Fig. 39 - Variation théorique de l'intensité de la composante étroite en fonction du champ magnétique pour différentes valeurs de τ_{po}

pouvait être amélioré en modifiant ce paramètre. Les résultats de ce calcul sont présentés sur la figure 40.

L'évolution des courbes pour $P = 0,4 - 0,5 - 0,6$ montre qu'un accord ne peut être réalisé en modifiant ce seul paramètre.

La variation de P qui améliore l'accord pour une direction du champ détériore cet accord pour la direction opposée. Il apparaît ainsi que $P = 0,5$ est la valeur qui fournit la variation la plus semblable à celle mesurée expérimentalement.

Nous avons alors refait le même genre de calcul pour différentes valeurs de W en choisissant pour P la valeur qui maximise l'accord avec l'expérience précédemment trouvée. Pour effectuer correctement ce calcul, il est à remarquer que l'hypothèse d'un $\Delta W_{\text{quartz}} < \Delta W_{\text{vide}}$ signifie que la fonction d'onde $|\psi(0)|^2$ est réduite pour le positonium dans le quartz.

Dans ce cas, la vie moyenne de l'état singulet $\tau_S = 4 \pi r^2 |\psi(0)|^2$ se trouvera aussi modifiée. Donc, non seulement la valeur de ΔW doit être variée, mais encore parallèlement la valeur de τ_S qui est reliée à ΔW par la relation :

$$\tau_S \cdot \Delta W = 137 \hbar$$

Par contre, la valeur de τ_T qui est issue de l'expérience et tient compte de la valeur réelle de ΔW a une valeur constante.

Les courbes obtenues pour différentes valeurs de ΔW sont représentées figure 41. Aucune valeur de ΔW ne permet de trouver un très bon accord avec les points expérimentaux.

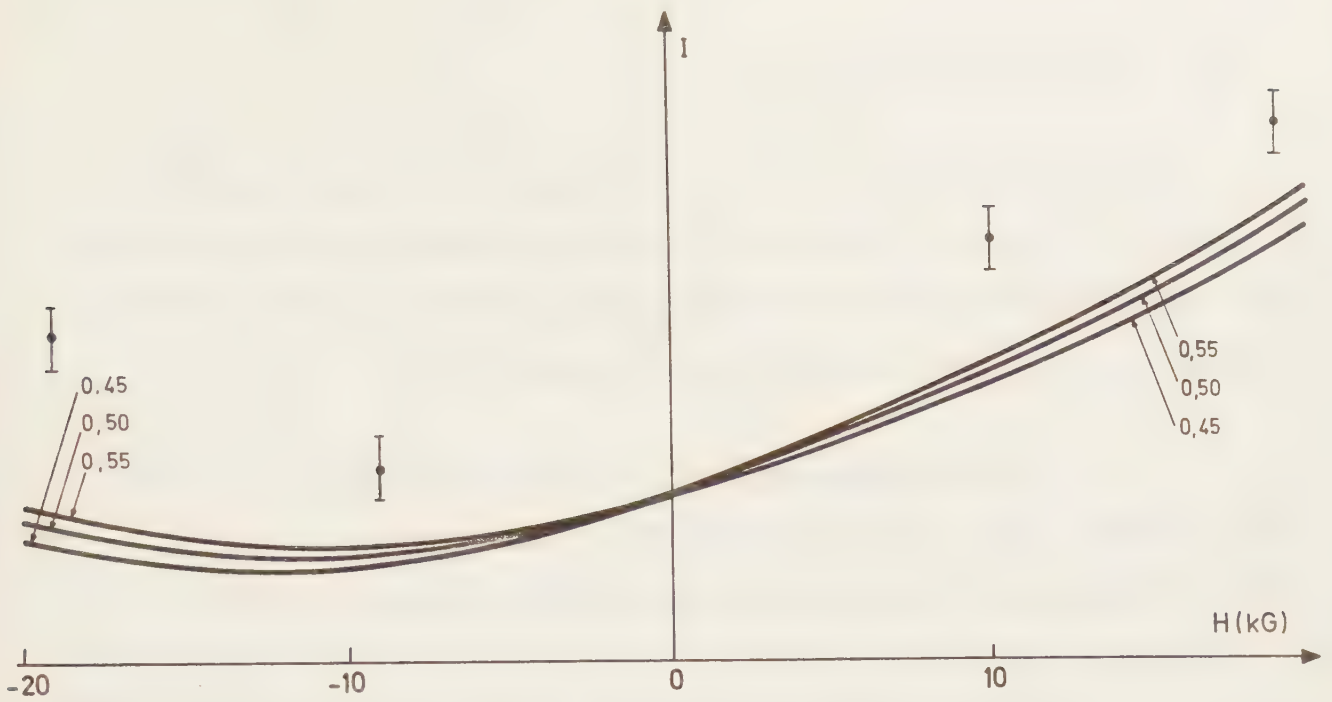


Fig.40 - Variations de l'intensité théorique de la composante étroite en fonction du champ magnétique pour différentes valeurs de P

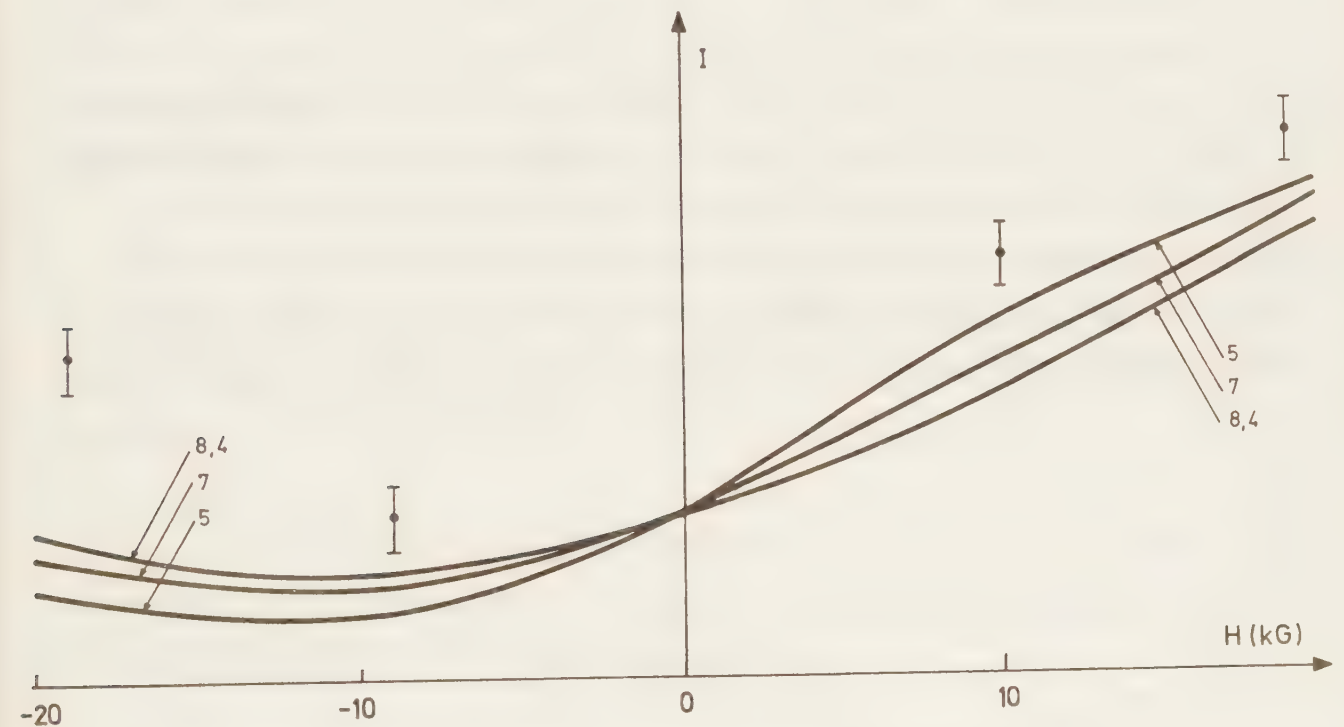


Fig. 41 - Variations de l'intensité théorique de la composante étroite en fonction du champ magnétique pour différentes valeurs de $\Delta W \times 10^{-4}$ eV

IV.4 - Modèle de Ps de type excitonique

Nous avons cherché à améliorer l'accord entre la théorie et l'expérience en considérant l'influence du milieu sur le Ps suivant un modèle suggéré par GOLDANSKI⁵⁶. Dans ce modèle l'électron et le positon forment du Ps dans un champ coulombien

$$U = - \frac{e^2}{\epsilon r} \quad \text{où } \epsilon \text{ représente la constante diélectrique du milieu.}$$

Les courbes théoriques obtenues à l'aide de ce modèle ne se rapprochent jamais de l'allure de la courbe expérimentale, les variations étant très rapides dans la gamme des valeurs expérimentales du champ magnétique, quelle que soit la valeur de ϵ .

Par suite, la description du Ps comme un exciton, suivant le modèle proposé par GOLDANSKI⁵⁶, est inadéquate pour interpréter nos résultats expérimentaux.

IV.5 - Conclusion

Bien qu'il ne soit pas possible d'obtenir un complet accord entre les mesures de temps de vie et d'effet Zeeman, il apparaît très raisonnable d'avancer que les singularités observées dans le quartz doivent résulter de l'annihilation de para-positonium. Le même type de désaccord est en effet observé dans d'autres milieux tels que l'eau où la présence de positonium peut être établie de manière indiscutable et où l'effet Zeeman observé, supérieur à celui prévu par la théorie, demeure jusqu'à présent inexpliqué.

CONCLUSION

En conclusion, les mesures de corrélation angulaire de l'annihilation du positon dans les isolants ont mis en évidence deux types de singularités qui reflètent soit la périodicité du réseau réciproque, soit la structure électronique du cristal.

En particulier nous avons trouvé une composante étroite sur les courbes de corrélation angulaire des monocristaux de SiO_2 et F_2Mg . Celle-ci est corrélée à l'existence de modulations qui apparaissent à des angles correspondant aux extrémités des vecteurs de base du réseau réciproque ou à leur projection sur la direction cristallographique normale au plan de détection.

Dans d'autres isolants tels que MgO , UO_2 , CaF_2 la distribution angulaire ne révèle pas de composante étroite, mais fait apparaître une seule modulation correspondant à la limite de la première zone de Brillouin suivant la direction cristallographique étudiée.

Les larges variations de l'intensité de la composante étroite du quartz, obtenues pour des cristaux d'origines variées ou à la suite de traitements différents, montrent que cette intensité est reliée à la perfection du cristal.

Ainsi une augmentation de la température, un accroissement de la concentration des impuretés d'aluminium, la création de centres colorés par irradiation tendent à

diminuer l'intensité de la composante étroite et des modulations tandis qu'une purification électrolytique ou un ralentissement de la vitesse de croissance du cristal ont pour effet d'augmenter cette intensité.

Le résultat de ces observations peut être compris en fonction des conditions rencontrées par le positon dans le cristal. S'il s'annihile librement avec des électrons du cristal, la structure révèle un effet de limite de zone dans les isolants. Cependant si le positon capture un électron pour former un état lié, il peut s'annihiler à $p = 0$ donnant naissance à une composante étroite. Si cet état lié est décrit par une onde de Bloch se propageant à travers le cristal, les modulations observées résultent des composantes de Fourier d'ordre élevé qui révèlent ainsi les vecteurs de base de la maille réciproque.

Enfin, l'évolution de l'intensité de cet état lié sous l'influence d'un champ magnétique, montre que son origine la plus probable est la formation du Positonium dans le cristal.

Il apparaît ainsi que la classe de cristaux que nous avons étudiés démontre l'existence sur le plan méthodologique de deux aspects nouveaux qui caractérisent l'annihilation du positon dans les isolants.

Il est donc possible d'envisager que dans ce domaine des détails de la structure électronique des isolants puissent être étudiés, qui jusqu'alors sont demeurés inaccessibles par d'autres méthodes expérimentales.

ANNEXE I

Matériaux				
Cristal	Origine	Provenance	Principales caractéristiques	Décapant utilisé
SiO_2	Nature	Brésil Madagascar		H.F.
	Synthétique	CNET Lannion (M. NIZERAY) * Dr. SAWYER * U.S.A.	Cristaux de différentes qualités et de vitesse de croissance variée. Cristaux ayant subi une purification électrolytique des impuretés.	
F_2Mg	Synthétique	Sté SOREM Pau	Cristal poli	SO_4H_2 55°C
CaF_2	Synthétique	Sté SOREM Pau CNRS Meudon (M. GRANIER, M. AUMONT) *	Différentes qualités : Non recuit, recuit ANAPOL	
UO_2	Synthétique	CEN Grenoble (M. DELMAS) *		1 SO_4H_2 , 1 H_2O 5 NH_4Cl (15')
MgO	Synthétique	Sté Semi Element Incorporation - USA	Echantillon fourni par le Dr. BELL de l'Université de Munich	
Al_2O_3	Synthétique	Sté DJEVAHIRD- JIAN - Suisse		
TiO_2	Synthétique	- d° -		

C diamant	Naturel	Sté DRUKKER Paris	Poudre de diamant 1 000 20 carats
	Synthétique		Poudre de diamant 500 20 carats
S monoclinique	Naturel	M. GARCIA * CNRS Meudon	
LiF	Synthétique	Quartz et Silice - Paris Sté HARSAW U.S.A.	Cristaux provenant du Laboratoire du Pr. LAMBERT , Orsay
KCl	Synthétique	Sté HARSAW Quartz et Silice	d°
NaCl	"	Sté HARSAW	d°
KBr	"	"	d°
BaTiO ₃	"	Sté I.B.M.	d°
KI	"	Origine inconnue vendu par la Sté SOREM Pau	
CsI	"	"	
AgCl	"	"	
CsBr	"	"	
GoP	"	Cristaux d'origine russe	Représentant : Sté ATLANTIQUE France

* Nous remercions ces personnes qui nous ont fourni aimablement des échantillons.

Publications relatives aux phénomènes mis en évidence dans ce travail

Laboratoire I.N.S.T.N.

- Réalisation d'un circuit de coïncidences possédant une résolution voisine de la nano-seconde pour des impulsions délivrées par scintillateur (NaI (TI)).
RIPON R. et COUSSOT G.
Rapport C.E.A. - R 3814 - Juin 1969.
- Positron Annihilation and Electronic Structure in Insulator Crystal
BRANDT W., COUSSOT G. et PAULIN R.
Phys. Rev. Let. 23, 522 (1969).
- Influence of Electron Irradiation on the Narrow Component in the Angular Correlation of Positron Annihilation in a Quartz Crystal
COUSSOT G.
Phys. Let. 30A, 138 (1969).
- Brillouin Zone Boundaries effect on Positron Annihilation in MgO and UO₂ crystals
COUSSOT G. et PAULIN R.
J. Phys. C : Solid St. Phys. 3, L 100 (1970).
- Positron Annihilation in Zirconium Single Crystal
COUSSOT G.
(à publier dans Phys. Rev.).

BRANDEIS UNIVERSITY

- Evidence for Positronium - Like Bloch States in Quartz Single Crystals

GREEBERGER A., MILLS A.P., THOMPSON A. et BERKO S.

Phys. Letters, 32A, 72 (1970).

QUEENS UNIVERSITY

- Is there a "Positronium Band" in Quartz

STEWART A.T., HODGES C.H., MICKEE B.T.A. and TRIFTSHAUSER W.

Bul. Am. Phys., 811 (1970).

BIBLIOGRAPHIE

- 1 - DIRAC F.A.M.
Proc. Camb. Phil. Soc. 26, 361 (1930).
- 2 - ANDERSON C.D.
Science 76, 238 (1932).
- 3 - LEE WHITING G.E.
Phys. Rev. 97, 1557 (1955).
- 4 - STEWART A.T. et SHANDT J.B.
Phys. Rev. Let. 16, 261 (1966).
- 5 - MOHOROVICIC S.
Astron. Nacht. 253, 94 (1934).
- 6 - DEUTSCH M.
Phys. Rev. 82, 455 (1951).
- 7 - WALLACE P.R.
Phys. Rev. 100, 738 (1955).
- 8 - ORE A.
Univ. Beigen Arbok n° 9, n° 12 (1949).

- 9 - FERRELL R.A.
Rev. Mod. Phys. 28, 308 (1956)
- 10 - BRANDT W. et FEIBUS H.
Phys. Rev. 184, 277 (1969)
- 11 - WHEELER J.A.
Ann. N.Y. Acad. Science, 48, 219 (1946).
- 12 - SIMMONS
Phys. Rev. 90, 165 (1953).
- 13 - HAUTOJARVI P., TAMMIMEN A. et JAVHO I.
Phys. Rev. Let. 24, 459 (1970).
- 14 - BRANDT W., WAUNG H.F. et LEVY P.W.
Intern. Symp. on color centers in alkali halides (Rome, 1968), p. 48.
- 15 - BRANDT W.
Positron Annihilation Conf. édité par A.T. STEWART et L.O. ROELLIG
(Academic Press, Inc., New York,
- 16 - BRAND W.
(Communication privée).
- 17 - STEWART A.T.
Canad. J. Phys. 35, 168 (1957).
- 18 - BERKO S. et PLASKETT J.S.
Phys. Rev. 112, 1877 (1958).
- 19 - CUSHNER S., ESKINE J.C. et BERKO S.
Phys. Rev. 1, 2852 (1970).

- 20 - BRANDT W.
Positron Annihilation Conf. édité par A.T. STEWART et L.O. ROELLING
(Academic Press, Inc., New York, 1967,), p. 174.
- 21 - PAULIN R.
Rapport C.E.A. - R 3 804 (1969).
- 22 - PAGE L.A., HEINBERG M., WALLACE J., TROUT T.
Phys. Rev. 98, 206 (1955).
- 23 - PAGE L.A., HEINBERG M., WALLACE J., TROUT T.
Phys. Rev. 99, 665 (1955).
- 24 - KUSMISS J.H. et STEWART A.T.
Positron Annihilation, édité par A.T. STEWART et L.O. ROELLING
(New York Academic Press, p. 341) (1967).
- 25 - KLOTZ A.S. et HAFEMEISTER
J. Chem. Phys. 49, 5326-30 (1968).
- 26 - COLOMBINO P., DEGREGORI I., MARYRONE L., TROSSI L. et
DE BENEDETTI S.
Phys. Rev. 119, 1665 (1960).
- 27 - KATZ L.
Rev. Mod. Phys. 24, 28 (1952).
- 28 - BERTOLACCINI M., BUSSOLATI C., COVA S.
Communication privée.
- 29 - RIPON R. et COUSSOT G.
Rapport C.E.A. - R 3 814 (1969).

- 30 - LØVSETH J.
Phys. Norvegica 1, 145 (1963).
- 31 - KREINER A.J., BELL F., HARDER D., HUETIL W. et SIZMAN R.
à publier dans Phys. Stat. Solidi.
- 31 bis - BRANDT W.
Communication privée
- 32 - LEVELUT A.M.
Thèse Orsay (1968).
- 33 - LANG A.R.
J. Appl. Phys. 30, 1748 (1959).
- 34 - VERHOOGEN J.
American Mineralogist 37, 637 (1952).
- 35 - MITCHELL E.W.J. et PAIGE E.G.S.
Phil. Mag. 1, 1085 (1956).
- 36 - BILLINGTON D.S. et CRAWFORD J.H.
Radiation damage in solids.
(Princeton University Press, 1961), pp. 224-233-249-267.
- 37 - PRIMAK W.
Phys. Rev. 110, 1240 (1958).
- 38 - WITTELS M.C. et SHERRILL F.A.
Phys. Rev. 93, 1117 (1954).
- 39 - COMES R., LAMBERT M. et GUINIER A.
Interaction of Radiation with Solids (Plenum Press, 1967) pp. 319-339

- 40 - STEVENS D.K.
Phys. Rev. 98, 1541 (1955).
- 41 - GRIFFITHS J.O. et WARD I.
Report of the Bristol Conference on Defects in Crystalline Solids
(London : Physical Society, 1955), p. 81.
- 42 - MITCHELL E.W.J. et PAIGE E.G.S.
Phil. Mag. 46, 1353 (1955).
- 43 - ARNOLD G.W.
Phys. Rev. 139, A 1234 (1965).
- 44 - DITCHBURN R.W., MITCHELL E.W.J., PAIGE E.G.S., CUSTERS J.F.,
DYER H.B. et CLARK C.D.
Proc. of Bristol Conf. (1954) on Defects in Crystal Solids, 92-107 (1955).
- 45 - ARNOLD G.W.
Phys. Rev. 140, A 176 (1965).
- 46 - HALL R.N.
J. Phys. Chem. 57, 886 (1953).
- 47 - JONES C.K. et BROWN C.S.
Proc. Phys. Soc., vol. 79 (1962).
- 48 - LAUDISE R.A., BALLMAN A.A. et KING J.C.
J. Phys. Chem. Solids - Pergamon Press, 1965, vol. 26, pp. 1305-1308.
- 49 - WALKER A.C.
J. American Ceramic Soc. Vol. 36, n° 8. (1953).
- 50 - WILLIAMS R.W., LOUCKS T.L. et MACKINTOSH A.R.
Phys. Rev. Let. 16, 168 (1966).

- 51 - WILLIAMS R.W. et MACKINTOSH A.R.
Phys. Rev. 168, 679 (1968).
- 52 - GUPTA R.P., LOUCKS T.L.
Phys. Rev. 176, 848 (1968).
- 53 - COUSSOT G.
à publier dans Phys. Rev.
- 54 - DICK L., FEUVRAIS L., MADANSKY L. et TELEGDI L.
Phys. Letters 3, 326 (1963).
- 55 - GREEBERGER A., MILLS A.P., THOMPSON A. et BERKO S.
Phys. Letters 32A, 72 (1970).
- 56 - GOLDANSKII V.I., PROKOPIEV E.S.
Zh. E.T.F., n° 10, 422-425, 15 Nov. 1966.

Manuscrit reçu le 24 novembre 1970

Vu et approuvé
Orsay, le 16 novembre 1970
Le Doyen de la Faculté des Sciences
d'Orsay

G. POITOU

